Injection de tensioactif pour la récupération assistée du pétrole : implication sur les lois régissant les écoulements eau-hydrocarbure-tensioactif en milieu poreux

Thomas Cochard

▶ **To cite this version:**

Thomas Cochard. Injection de tensioactif pour la récupération assistée du pétrole : implication sur les lois régissant les écoulements eau-hydrocarbure-tensioactif en milieu poreux. Sciences de la Terre. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2017. Français. NNT : 2017PA066647 . tel-01591191

HAL Id: tel-01591191

https://theses.hal.science/tel-01591191

Submitted on 21 Sep 2017

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Université Pierre et Marie Curie

Ecole doctorale Géosciences et ressources naturelles

IFP Energies nouvelles

Direction Géosciences, département Géofluides et roches

Injection de tensioactif pour la récupération assistée du pétrole : implication sur les lois régissant les écoulements eau-hydrocarbure-tensioactif en milieu poreux

Par Thomas COCHARD

Thèse de doctorat

Dirigée par Yannick PEYSSON, René TABARY, Frédéric DOUARCHE et Hugues BODIGUEL

Présentée et soutenue publiquement le 9 mars 2017

Devant un jury composé de :

Elise Lorenceau	Directeur de recherche (Université de Grenoble)	Rapporteur
Pacelli Zitha	Professeur (Université de Delft)	Rapporteur
Dominique Salin	Professeur (Université Pierre et Marie Curie)	Examinateur
Guillaume Degré	Responsable laboratoire EOR, Solvay	Examinateur
Hugues Bodiguel	Professeur (Université de Grenoble)	Co-encadrant
Yannick Peysson	Chercheur IFPEN	Directeur de thèse
René Tabary	Chercheur IFPEN	Co-encadrant
Frédéric Douarche	Chercheur IFPEN	Co-encadrant

This work is licensed under a Creative Commons Attribution-NonCommercial 4.0 International License.

Le vrai point d'honneur n'est pas d'être toujours dans le vrai. Il est d'oser, de proposer des idées neuves, et ensuite de les vérifier.

Pierre-Gilles de Gennes

Résumé

L'objectif principal de ces travaux de thèse est l'étude expérimentale de la mobilisation de l'huile dans le cadre de la récupération assistée du pétrole à base de tensioactif dans un milieu poreux en deçà de la saturation en huile résiduelle. A saturation en huile résiduelle, le réseau d'huile est déconnecté et constitué de ganglions de formes et de tailles variées répartis dans l'ensemble du milieu poreux. Cette huile résiduelle est difficile à produire dans les conditions classiques de récupération du pétrole à cause du piégeage capillaire des ganglions, piégeage corrélé à la tension interfaciale entre l'huile et l'eau. L'utilisation de tensioactifs permet de diminuer de plusieurs ordres de grandeur la tension interfaciale, vers des valeurs pouvant être ultra-basses (10^{-3} mN/m), permettant ainsi de diminuer drastiquement les forces capillaires et ainsi de mobiliser cette huile.

Le déplacement de la solution de tensioactif et sa caractérisation a été réalisé au travers d'injections en milieux poreux dits "modèles", pouvant être considérés comme des éléments représentatifs d'un réservoir gréseux. L'étude a été réalisée dans un premier temps en conditions monophasiques, c'est-à-dire en absence d'huile. Les courbes de percée ont été analysées pour étudier les paramètres de dispersivité et d'adsorption des échantillons. Les expériences sont ensuite utilisées pour améliorer la modélisation du transport du tensioactif en milieu poreux. Nous avons montré qu'il est en effet bien plus pertinent d'utiliser un modèle d'adsorption de Langmuir cinétique.

Pour le cas diphasique, nous avons développé un système microfluidique, en deux dimensions avec une géométrie de pore variable, le plus représentatif possible d'un milieu poreux naturel. Il s'agit dans les expériences d'injecter un petit ganglion d'huile à travers un canal central et de balayer la puce microfluidique avec la solution tensioactive dans des conditions contrôlées. L'objectif est d'étudier le déplacement du ganglion d'huile au sein du micromodèle. De nouveaux mécanismes sont identifiés et une voie de modélisation des phénomènes physiques est proposée.

Une meilleure compréhension du transport du tensioactif et de l'huile dans les milieux poreux est primordiale pour améliorer la modélisation dans le cadre de la récupération assistée du pétrole par voie chimique. Au travers de ces travaux de thèse, nous sommes désormais

capables d'évaluer et de quantifier les principaux mécanismes du transport de tensioactifs et d'huile à l'échelle de Darcy.

Abstract

The main objective of the PhD is to study experimentally the oil mobilization using surfactant in a porous media below the residual oil saturation. At the residual oil saturation, the oil network is disconnected and organized in ganglia of different sizes and shapes all along the sample. This residual oil is difficult to produce in the classical conditions of water flooding because of capillary trapping created by the interfacial tension between oil and water. Injection of surfactant is able to mobilize the remaining oil at flow rates consistent with the real case of an oil mature reservoir.

The use of surfactant allows lowering the interfacial tension by several orders of magnitude, towards ultra-low values (10^{-3} mN/m), strongly decreasing the capillary forces and so, mobilizing the oil.

The first main study of the PhD work was to characterize the displacement of the surfactant injected in a sandstone sample in monophasic conditions (without oil). Breakthrough curves have been analyzed in term of dispersivity and adsorption. Experiments have shown that a better way to model the surfactant transport is to use a Langmuir kinetic adsorption model.

For the diphasic case, we have developed a microfluidic 2D system with a random pore geometry of controlled conditions. The experiments are based on the injection of a small ganglia through a central channel, then, a surfactant flood is generated. The aim is to see how ganglia are displaced within the micromodel. New mechanisms have been identified and a way to model those phenomena has been proposed.

The understanding of surfactant transport in porous media is key for chemical enhanced oil recovery processes. Through the PhD work, we were able to evaluate and quantify the main mechanisms for surfactant and oil transport at the Darcy scale.

Remerciements

La thèse de doctorat représente un travail s'inscrivant dans la durée, et pour cette raison, constitue le fil conducteur d'une tranche de vie de son auteur, au crépuscule de la vie étudiante, et à l'aube de la maturité scientifique. De nombreuses personnes se retrouvent ainsi entre le doctorant et son doctorat. Ce sont ces personnes que j'aimerais remercier.

En premier lieu, je tiens à remercier Mme Olga Vizika pour m'avoir accueilli dans sa direction ainsi que Jean-Marc Lombard pour m'avoir accueilli au sein du Département R163, Géofluides et roches.

Je tiens aussi à remercier l'équipe de l'école doctorale ED398 de l'université Pierre et Marie Curie en particulier le Pr François Baudin (ancien directeur de l'école doctorale), le Pr Loïc Labrousse (nouveau directeur de l'école doctorale) et Mme Dovy Tristani.

Ensuite, je remercie grandement mon directeur de thèse Yannick Peysson ainsi que mes co-encadrants, Hugues Bodiguel, René Tabary et Frédéric Douarche. Je n'aurais jamais pu réaliser ce travail doctoral sans votre soutien, votre générosité, la bonne humeur de travail et l'intérêt que vous avez manifesté à l'égard de mes recherches. Yannick, en particulier, je tiens à te remercier pour ta patience, ta pédagogie et l'excellence scientifique que tu n'as eu de cesse de m'inculquer. Hugues, je tiens à te remercier pour ces voyages dans les Alpes, en effet lors de mes cinq semaines passées à Grenoble j'ai énormément appris grâce à toi. René, je te remercie tout particulièrement pour ta gentillesse, ta patience, tes encouragements qui m'ont permis dans les moments difficiles de rebondir. Frédéric, je te remercie pour nos échanges, je n'ai malheureusement pas eu le temps de plus développer la partie simulation dans ces travaux de thèse mais j'ai eu grâce à toi l'occasion de me pencher sur ces questions. Je tiens aussi à tous vous remercier pour vos relectures, corrections et répétitions qui m'ont permis de remettre un bon nombre de choses au point.

A l'issue de la rédaction de cette recherche, je suis convaincu que la thèse est loin d'être un travail solitaire. En effet, je n'aurais jamais pu réaliser ce travail seul avec mes encadrants. Beaucoup d'autres personnes sont intervenues, à ce titre, je remercie :

Fréderic Martin et François Lamy, le binôme de choc qui m'a accueilli, prit sous son aile et apprit pratiquement tout ce que je devais savoir sur les montages. J'ai passé trois très bonnes années avec vous.

Marc Legentil et Serge Gautier, grâce à vous la centrifugation des roches n'a presque plus de secret pour moi.

Marie Moiré et Aurélie Mouret, j'ai pu grâce à vous réaliser les études physico-chimique. Marie, merci d'avoir pris le temps pour me passer une partie du flambeau et merci Aurélie de m'avoir permis de réaliser ces études.

Souhail Youssef, Matthieu Mascle et Hervé Deschamps, je tiens à vous remercier pour votre aide à plusieurs moments de ma thèse et particulièrement pour toutes les manips avec le montage CAL-X. J'ai eu une chance inouïe de travailler avec vous. Merci aussi à Marie-Claude Lynch pour son aide en microtomographie.

Je tiens aussi à remercier chaleureusement Alexis Mauray, tout d'abord pour ton accueil à Grenoble mais aussi pour ta patience et d'avoir pris le temps de m'expliquer le b.a.-ba de la microfluidique, j'ai beaucoup appris grâce à toi.

Je tiens finalement à remercier mes amis que j'ai eu la chance de rencontrer au cours de cette thèse, Guillaume Berthe, mon premier co-bureau, Isabelle Bernachaud, ma seconde co-bureau pendant plus de 2 ans ! Julia Guelard, Xavier Mangenot, Mario Bellamy, Vincent Crombez, Chahir Jerbi, Arthur Thenon, Bertrand Paul, Matthieu Mascle, Anouk Beniest, Camille Parlangeau, ainsi que tous les autres personnes avec qui j'ai eu la chance de passer de très bons moments à l'IFPEN. Je tiens aussi à remercier mes coéquipiers de tennis, Thibault Faney et surtout Christian Dupré, grâce à toi, plus de soucis avec mon revers.

Je tiens à remercier mes anciens encadrants de Total, qui lors de mon stage de fin d'étude m'ont donné le goût de ce métier et de ces recherches. C'est avec vous que tout a commencé. Je remercie très chaleureusement Clément Fabbri ainsi que le Dr Jaime Jimenez.

Achever un tel travail n’est possible qu’avec un entourage qui vous soutient et vous encourage tous les jours. Je tiens à remercier tous mes amis, vous m’avez énormément apporté. Je tiens aussi à remercier ma mère, mon père et mon frère pour votre soutien et la force que vous m’avez transmis. Aussi, je tiens à remercier mes grands-parents. Sans vous je ne sais pas où je serais et je tiens à vous dédicacer les travaux que je vais présenter.

Table des matières

Résumé 3

Abstract 5

Remerciements 6

Table des matières 9

Introduction 12

Chapitre 1 : Contexte et motivation 14

1.1 La récupération assistée du pétrole 14
1.1.1 Formation du pétrole et des roches réservoirs aux temps géologiques 14
1.1.2 Exploitation du réservoir : plusieurs étapes dans la production du pétrole 15

1.2 Représenter les écoulements en milieux poreux 17
1.2.1 La loi de Darcy 17
1.2.2 Loi de Darcy diphasique 17
1.2.3 Drainage et imbibition 19

1.3 Les forces en présence à l'échelle du pore 20
1.3.1 Nombre capillaire 20
1.3.2 Nombre de Reynolds 21
1.3.3 Nombre de Bond 21
1.3.4 Le rapport des viscosités 21

1.4 La pression capillaire en milieu poreux 22
1.4.1 Notion locale de pression capillaire 22
1.4.2 Les courbes de pression capillaires dans les milieux poreux 23

1.5 Application à l'EOR chimique tensioactif 25
1.5.1 Les types de tensioactifs 25
1.5.2 Caractéristiques des tensioactifs 26
1.5.3 Formulation des solutions tensioactives : étude des microémulsions 27

1.6 Répartition eau/huile en milieu poreux après l'injection d'eau 30
1.6.1 Les courbes de désaturation capillaire 30
1.6.2 Observations à l'échelle des pores 31

1.7 Mobilité de l'huile après dépiégeage 36
1.7.1 Déplacement de l'huile et du tensioactif dans un milieu poreux réel 36
1.7.2 Evolution du cadre de darcy diphasique en deçà de la saturation en huile résiduelle 37

1.8 Objectifs de la thèse 39

Chapitre 2 – Transport d'un tensioactif en milieu poreux naturel 41

2.1 Le phénomène de dispersion 41
2.1.1 Définition de la dispersion hydrodynamique 41
2.1.2 Dispersion dans un tube capillaire 44
2.2 Montage expérimental, fluides et échantillons 44
2.2.1 Montage expérimental 44
2.2.2 Fluides utilisés 45
2.2.3 Validation de la méthodologie expérimentale : dispersion de Taylor dans un tube capillaire 52
2.2.4 Discussion sur le choix des paramètres expérimentaux 54
2.2.5 Caractéristiques générales des échantillons de roche 56
2.3 Etude du transport d'un traceur passif en milieu poreux 62
2.3.1 Mesure de la dispersivité des échantillons de grès de Clashach 62
2.3.2 Modélisation du transport d'un traceur dans un milieu poreux 64
2.4 Etude du transport du SDBS en milieu poreux 69
2.4.1 Dispersion du SDBS en milieu poreux 69
2.4.2 Modélisation du transport du SDBS avec le modèle de Langmuir à l'équilibre 71
2.4.3 Modélisation du transport du SDBS avec le modèle de Langmuir cinétique 73

Chapitre 3 – Transport d'un tensioactif en milieu poreux naturel à saturation en huile résiduelle 79

3.1 Déplacement eau/huile en milieux poreux sans tensioactif 79
3.2 Mesure expérimentale des perméabilités relatives eau/huile en milieu poreux naturel en conditions d'imbibition 81
3.3 Nombre capillaire critique de dépiégeage et courbes de désaturation capillaires 85
3.3.1 Nombre capillaire critique de dépiégeage 85
3.3.2 Courbe de désaturation capillaire 88
3.3.3 Mesures des CDC par centrifugation et RMN 89
3.3.4 Détermination des CDC à partir du montage CAL-X 92
3.3.5 Mise à Swi des échantillons par centrifugation puis mise à saturation en huile résiduelle par imbibition spontanée 95
3.4 Dispersion du traceur passif à saturation en huile résiduelle 97
3.5 Transport du SDBS à saturation en huile résiduelle 101

Chapitre 4 – Etude du déplacement d'un mono-ganglion d'huile en milieu poreux modèle (micromodèle) 106

4.1 Conception et fabrication du micromodèle 110
4.1.1 Stratégie, matériaux et design du système microfluidique 110
4.1.2 La microfabrication 112
4.1.3 Caractérisation de la NOA81 115
4.1.4 Dispositif expérimental pour l'étude du transport de l'huile en micromodèle 117
4.1.5 Le traitement d'image 121
4.1.6 Protocoles d'injection 121

4.2 Observations qualitatives du déplacement d'un ganglion en micromodèle 123
4.2.1. Balayage à débit faible 123
4.2.2. Balayage à débit dépiègeant 124
4.2.3 Balayage à un débit de production 127

4.3 Etude quantitative des phénomènes observés en micromodèle 128
4.3.1. Huile résiduelle 128
4.3.2 Fragmentation du ganglion initial 131
4.3.3 Etude de la vitesse des gouttes mobiles 132

4.4 Modélisation du piégeage des gouttes d'huile 140
4.4.1 Mise en place d'un modèle à partir des observations expérimentales 140
4.4.2 Validation de la modélisation du piégeage de l'huile 142

Chapitre 5 – Production de l'huile résiduelle en milieu poreux naturel 148

5.1 Protocole expérimental 149
5.1.1 Dispositif expérimental 149
5.1.2 Sélection des débits d'injection pour l'étude de la production d'huile 152
5.1.3 Protocole pour l'injection des solutions 153

5.2 Analyse/quantification de la production de l'huile résiduelle 153
5.2.1 Spectrophotométrie multi longueur d'onde en ligne 153
5.2.2 Burette graduée 156
5.2.3 Détermination de la perméabilité en fin d'injection 157

Conclusions et perspectives 162

Bibliographie 165

Table des figures 170

Introduction

Actuellement, 95 millions de barils de pétrole sont produits par jour. Lorsque cinq barils sont consommés, un seul baril est découvert. Le moyen d'augmenter les ressources pétrolières conventionnelles disponibles est de développer des méthodes de récupération assistée du pétrole ou EOR (*« Enhanced Oil Recovery »*). Il en existe plusieurs types :

- EOR par injection de gaz miscibles (généralement du CO_2), permettant ainsi d'améliorer la mobilité de l'huile piégée tout en stockant géologiquement une partie du gaz à effet de serre injecté.

- EOR thermique par injection de vapeur d'eau : en chauffant l'huile en place, on entraine sa fluidification, elle est alors plus mobile dans le gisement.

- EOR Chimique par injection de solutions chimiques permettant d'améliorer le déplacement de l'huile en place grâce d'une part à un effet viscosifiant (polymer), et grace d'autre part à l'abaissement de la tension interfaciale (tensioactif et alcalins). Ces effets peuvent être combinés dans le cadre d'une injection ASP (Alcalin, Surfactant, Polymère).

Nous nous intéresserons dans cette thèse à l'injection de solution tensioactive pour la récupération assistée du pétrole. On sait que lors d'un premier balayage d'un gisement à l'eau, une partie significative de l'huile reste piégée par l'effet des forces capillaires. Celles-ci sont dues à la valeur élevée de la tension interfaciale entre l'huile et l'eau (de l'ordre de 30 à 50 mN/m). Dans le cas d'une roche mouillable à l'eau, la saturation en huile résiduelle après balayage à l'eau peut atteindre 40-50%. A l'échelle des pores de la roche, cette huile piégée est composée de fragments discontinus distribués dans la microstructure. Cette huile n'est plus mobile au sens de Darcy, sa perméabilité relative est nulle. Or, l'injection de tensioactifs permet de mobiliser cette huile et un débit de production est à nouveau observé.

L'étude de la production d'un gisement pétrolier repose sur l'utilisation d'outils de simulation tels que les simulateurs réservoirs. Ces outils industriels sont adaptés à la récupération primaire et secondaire basée sur l'utilisation de l'équation de Darcy. Or, dans le

cas de la récupération tertiaire chimique avec tensioactif, la loi de Darcy n'est plus applicable puisqu'elle repose sur l'hypothèse principale que le réseau d'huile est continu dans le réservoir. L'essence de ces travaux de thèse repose sur l'étude expérimentale des écoulements eau, huile, tensioactif afin de mettre en évidence les phénomènes physiques propres à cette récupération tertiaire.

Ainsi, dans un premier temps, nous étudierons l'écoulement monophasique de tensioactif dans un grès naturel afin de mettre en évidence les phénomènes physiques caractéristiques de la convection des molécules tensioactives au cours de leur transport en milieu poreux en plus du phénomène de dispersion que l'on observe lors du transport d'un traceur passif. Il sera question en particulier de modéliser le phénomène d'absorption du tensioactif présentant quelques subtilités. Par la suite nous nous attarderons de nouveau sur le transport du tensioactif mais dans un milieu poreux initialement saturé en huile à saturation en huile résiduelle (état de saturation à la fin de la récupération secondaire), sans dépiégeage de cette huile, nous étudierons ainsi l'influence de la présence d'huile sur le transport du tensioactif. Ayant ainsi caractérisé le transport du tensioactif, nous avons mis en place un système microfluidique poreux grâce auquel nous étudierons le dépiégeage de l'huile en deux dimensions. Ainsi nous montrerons que le transport de l'huile est principalement régi par les phénomènes de fragmentation, de piégeage et de dépiégeage dans notre système et au régime de vitesse d'écoulement considéré. Ainsi des voies de modélisation de ces phénomènes seront proposées. Finalement, nous poursuivrons les expériences en étudiant la production d'huile dans un milieu poreux naturel.

L'étude ainsi proposée a pour objectif d'établir les prémices de la construction d'un outil de simulation complet capable de prédire la production d'huile d'un réservoir mature nécessitant une récupération tertiaire à base de tensioactif pour améliorer le facteur de récupération. La mise en œuvre d'un procédé chimique à base de tensioactifs nécessite une évaluation préliminaire de l'économie du projet prenant en compte les investissements, le coût des produits, les coûts opérationnels, à comparer avec la quantité d'huile incrémentale attendue. Il est clair que ce type de procédé sera d'autant plus favorable avec un prix du baril de pétrole suffisamment haut.

Chapitre 1 : Contexte et motivation

1.1 La récupération assistée du pétrole

1.1.1 Formation du pétrole et des roches réservoirs aux temps géologiques

Au cours du temps, l'érosion des roches produit des sédiments qui s'accumulent dans les fonds marins tout en piégeant de la matière organique. Ces accumulations successives vont former des strates qui vont subir des contraintes de pression et de température croissantes au cours de leur enfoncement. A partir d'une pression et température seuils, la dégradation thermique des éléments organiques d'origine biologique appelés kérogène commence : le pétrole est synthétisé par craquage thermique. Cette réaction chimique conduit à un mélange complexe de molécules organiques telles que des paraffines (alcanes linéaires), des naphtènes (cycloalcanes), des molécules aromatiques, des acides naphténiques, des résines ou encore des asphaltènes (molécules organiques encore peu connues, de taille importante, généralement composées de plusieurs cycles aromatiques et de quelques hétéroatomes). Les atomes majoritairement présents sont le carbone et l'hydrogène mais le pétrole contient également des atomes de soufre, d'azote et d'oxygène.

Moins denses que l'eau, le pétrole et les gaz synthétisés quittent la roche mère et commencent un long processus de migration à travers des roches poreuses. Lorsqu'ils rencontrent une roche imperméable, dite roche couverture, la migration s'arrête, le pétrole et le gaz s'accumulent dans ce milieu confiné et forment un réservoir (Figure 1).

Une roche réservoir est donc une roche *perméable* et *poreuse* dont la *mouillabilité* dépend de la nature des minéraux qui la composent et de la nature de l'huile en place. Nous verrons par la suite l'importance de ces trois paramètres étudiés en pétrophysique, sur la production du pétrole.

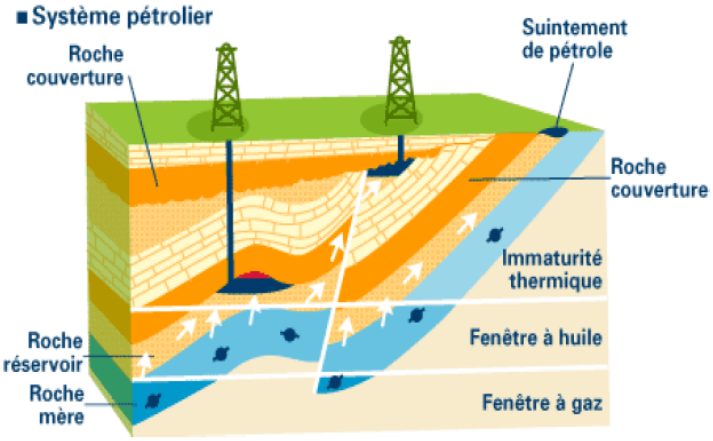


Figure 1 - Système pétrolier (crédit : IFPEN)

1.1.2 Exploitation du réservoir : plusieurs étapes dans la production du pétrole

La production d'un réservoir se déroule en plusieurs étapes. La première étape de l'exploitation du réservoir est la récupération primaire : ce type de production est induit par des mécanismes naturels tels que l'expansion du ciel gazeux lors de la dépressurisation du réservoir ou encore la remontée de l'eau provenant d'un aquifère (Morrow 1991). Un autre mécanisme, à savoir la compaction de la roche due à la diminution de la pression au sein des pores, est pris en compte uniquement dans les cas de subsidence forte (enfoncement lent de la lithosphère qui, dans ce cas, est provoqué par l'extraction du pétrole). L'ensemble de ces mécanismes contribue au maintien de la pression au sein du réservoir pendant un certain temps de production. Cette première étape permet de produire entre 5 et 30 % de la quantité de pétrole initialement en place, le pourcentage dépendant de la nature du brut et du réservoir.

Ensuite, pour poursuivre l'exploitation du réservoir, avoir recours à une récupération dite améliorée ou secondaire est indispensable. Ce type de récupération consiste principalement à pallier la diminution de la pression au sein du réservoir due à la mise en production. Deux méthodes de récupération secondaire sont principalement employées : la réinjection du gaz produit en tête de puits appelé « gas flooding » et, la plus courante, l'injection d'eau, appelée « waterflooding ». Cette dernière méthode est privilégiée pour des raisons de coûts, malgré une efficacité moindre comparativement à celle obtenue par l'injection de gaz (Betzer 1950), (Willhite 1986), (Healy 1977). Elle consiste à injecter de très grandes quantités d'eau à la base du gisement afin de balayer le réservoir pour « pousser » le

pétrole vers le puits de production. Cette méthode ne fonctionne qu'un temps puisque d'une part les forces capillaires conduisent à la rétention de quantités importantes de brut derrière le front d'écoulement et d'autre part, suivant les cas, l'eau peut être produite plus ou moins prématurément au niveau des puits producteurs. Suivant la mouillabilité de la roche réservoir (mouillable par l'eau ou par le pétrole brut), le pétrole brut (huile) piégé dans les interstices des pores peut avoir des configurations différentes ; après une durée de balayage à l'eau suffisamment longue, si la roche est mouillable à l'eau, l'huile va devenir discontinue au sein du réseau de pores et la production va s'arrêter, on considère alors que la mobilité de l'huile, sa vitesse de déplacement, est nulle (Healy 1977). Dans le cas contraire, l'huile résiduelle couvre les parois de la roche et, après la percolation de l'eau aux puits producteurs, la production peut continuer par l'écoulement des films d'huile et ce, tant que la production de pétrole reste économiquement viable (en effet, la mobilité de l'huile produite par film est lente). La quantité de pétrole brut moyenne, produite par récupération secondaire, correspond, en moyenne, pour des réservoirs gréseux, à environ 30-50 % de la quantité initialement en place.

Pour récupérer les 50 à 70 % restant, des méthodes de récupération assistée (*"Enhanced Oil Recovery"*) ou récupération tertiaire doivent être mise en place. Il existe trois grandes catégories de récupération tertiaire : la méthode thermique, l'*EOR* chimique et la miscibilité. La méthode thermique consiste, par exemple, à injecter de la vapeur afin de diminuer la viscosité du brut. L'injection de CO_2 supercritique (méthode miscible) possède un double effet : la solvatation du pétrole brut facilitant sa mobilisation par une baisse de la viscosité, et la diminution de la tension interfaciale. Enfin, l'EOR chimique peut consister en l'application de divers procédés et types d'injections. Ainsi, il est possible d'injecter des viscosifiants (P) (polymères tels que des polyacrylamides partiellement hydrolysés) et/ou des tensioactifs (S) et/ou des alcalins (A). Lorsque l'on combine ces trois méthodes d'*EOR* chimique, on parle de procédés ASP (Alcalin, Surfactant, Polymère).

1.2 Représenter les écoulements en milieux poreux

1.2.1 La loi de Darcy

Filtrer du café ou essorer son linge sont des exemples familiers d'écoulement forcé d'un fluide dans un milieu poreux. Dans le cas d'un écoulement dans une roche naturelle, les natures d'écoulement sont similaires.

La théorie pour étudier les écoulements fluides en milieu poreux se base sur les expériences d'Henry Darcy de 1856 où l'ingénieur étudia l'écoulement d'eau à travers des milieux poreux constitués de sable en vue du dimensionnement d'ouvrages d'alimentation en eau potable de la ville de Dijon (Darcy 1856). Les expériences qu'il a réalisées ont abouti à la formulation de la loi fondamentale des écoulements en milieux poreux.

$$Q = A\,\frac{K}{\mu}\left(\frac{\Delta P}{L} + \rho g\right) \tag{1.1}$$

Où Q est le débit volumique, A est la section traversée par le fluide, K la perméabilité intrinsèque du milieu, μ la viscosité dynamique du fluide, L la longueur de la colonne, ρ la masse volumique de l'eau, g l'accélération de la pesanteur et $\Delta P = P_e - P_s$, la différence de pression entre l'entrée et la sortie.

La loi de Darcy permet donc de relier le débit à la différence de pression entre l'entrée et la sortie d'un milieu poreux en introduisant la perméabilité K qui est la caractéristique propre de chacun de ces milieux traversés par un fluide donné. K est analogue à une surface et s'exprime en m^2.

1.2.2 Loi de Darcy diphasique

Dans le cas de l'écoulement de deux fluides non miscibles, des auteurs tels que Muskat (Muskat 1937), Buckley et Leverett (Buckley 1942) ont participé à la généralisation de la loi de Darcy. Cette démarche a été menée dans le cadre de la production pétrolière. On considère deux fluides, l'eau et l'huile et les débits d'eau et d'huile sont exprimés en fonction des gradients de pression de manière analogue à la loi de Darcy à une seule phase :

$$\frac{Q_{eau}}{A} = \frac{Kk_{reau}}{\mu_{eau}} \frac{\Delta \mathrm{P}_{eau}}{L} \qquad \frac{Q_{huile}}{A} = \frac{Kk_{rhuile}}{\mu_{huile}} \frac{\Delta P_{huile}}{L} \qquad (1.2)$$

Avec Q_{eau} et Q_{huile}, respectivement les débits volumiques de la phase eau et de la phase huile, $\Delta \mathrm{P}_{eau}$ et ΔP_{huile}, respectivement la pression dans la phase eau et dans la phase huile, μ_{eau} et μ_{huile} les viscosités dynamiques respectivement de la phase eau et de la phase huile, k_{reau} et k_{rhuile}, respectivement les perméabilités relatives du milieu à l'eau et à l'huile. Dans cette approche, on considère qu'en un même point, la pression est différente entre l'eau et l'huile. La différence de pression est définie comme la pression capillaire dont la notion sera précisée plus loin.

On découple donc l'équation de Darcy pour un fluide en deux équations pour chacun des fluides en faisant intervenir k_r, correspondant à la perméabilité relative du milieu poreux pour un fluide particulier.

L'utilisation de ces équations suppose plusieurs hypothèses restrictives :

- La continuité des deux fluides dans tout le milieu poreux
- Les écoulements fluides sont laminaires
- Les phénomènes capillaires sont dominant localement à l'échelle des pores par rapport aux contraintes visqueuses

Les perméabilités relatives introduite dans la loi de Darcy diphasique sont des fonctions uniquement de la saturation (fraction de l'un des deux fluides par rapport à l'autre) dont l'allure est représentée sur la Figure 2.

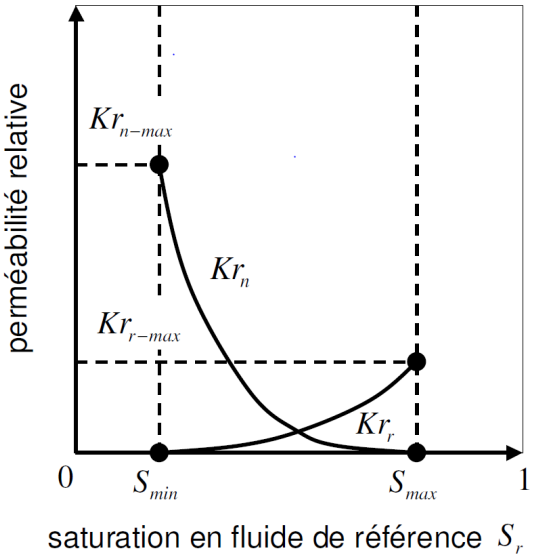


Figure 2 – Forme générale des courbes de perméabilités relatives

L'existence de seuils de saturations s'interprète par la notion de percolation en représentant un volume élémentaire du milieu poreux par un réseau de capillaires interconnecté. L'ensemble des pores sont interconnectés formant ainsi un réseau rempli entièrement par les fluides. A très faible saturation, les pores contenant le fluide ne forment plus de chemin continu à travers ce réseau, alors le fluide ne peut plus s'écouler ($Sw = 1 - Sor$). Il existe une saturation critique ou seuil de percolation pour que les pores contenant ce fluide deviennent connectés.

Nous pouvons déjà noter que dans l'approche classique, le débit d'huile prédit pour de faible saturation en huile (Sr supérieur à Smax dans la figure 2) est nul. Il n'est pas possible dans ce cadre de produire l'huile résiduelle.

1.2.3 Drainage et imbibition

On distingue deux catégories d'écoulement de fluides non miscibles, le *drainage* où le fluide non mouillant déplace le fluide mouillant et *l'imbibition* où le fluide mouillant déplace le fluide non mouillant. Ces deux modes d'écoulement différents sont importants car ils engendrent deux types d'organisation et de répartition des fluides dans le milieu poreux. Et donc en pratique, on définit deux jeux de perméabilités relatives, un en écoulement de drainage et un en écoulement d'imbibition.

1.3 Les forces en présence à l'échelle du pore

A l'échelle des pores, quatre types de forces principales sont à considérer pour caractériser les propriétés d'écoulements :

- Les forces visqueuses liées au fluide déplaçant
- Les forces visqueuses liées au fluide déplacé ;
- La tension interfaciale à l'interface entre les deux fluides et la mouillabilité ;
- La gravité.

On définit à partir de ces forces le nombre capillaire, le nombre de Bond, le nombre de Reynolds et le rapport des viscosités entre les deux fluides. Ces nombres sans dimension traduisent les compétitions entre les différentes forces.

1.3.1 Nombre capillaire

Le nombre capillaire exprime le rapport entre les forces visqueuses et la tension superficielle.

$$N_c = \frac{\mu v}{\gamma} \tag{1.3}$$

Dans un réservoir l'ordre de grandeur des vitesses de déplacement est de la dizaine de centimètre par jour (il est usage de prendre la référence d'un pied par jour) ce qui conduit à une vitesse de l'ordre de 10^{-6} m/s. La tension interfaciale entre l'eau et l'huile est typiquement de 50mN/m ce qui donne un nombre capillaire : $Nc = 10^{-8}$. Il est donc à noter que le régime d'écoulement classique eau/huile en milieu poreux s'effectue à très bas nombre capillaire.

Cet effet très prépondérant de la capillarité à l'échelle locale a des conséquences très importantes pour l'interprétation des écoulements diphasiques en milieu poreux. En effet, on considère que pour une géométrie donnée, la répartition des fluides dans l'espace ne dépend pas des vitesses des phases localement mais essentiellement du rapport du volume et du mode de remplissage de la géométrie (drainage ou imbibition). Ceci justifie le fait que les perméabilités relatives ne dépendent que de la saturation locale et du mode de remplissage d'un volume donné.

1.3.2 Nombre de Reynolds

Le nombre de Reynolds est utilisé pour caractériser le régime d'un écoulement de vitesse V dans un échantillon de longueur L. Il représente le rapport entre les forces d'inertie et les forces visqueuses.

$$Re = \frac{VL}{v} \tag{1.4}$$

Pour de l'eau et une taille de pore de 10µm : Re = 10^{-5}

1.3.3 Nombre de Bond

Le nombre de Bond introduit le ratio entre les forces capillaires et les forces gravitaires.

$$Bo = \frac{\Delta\rho g L^{2}}{\gamma} \tag{1.5}$$

Avec $\Delta\rho$, le contraste de masses volumiques des deux fluides entre les deux fluides, g l'accélération gravitationnelle, γ la tension interfaciale et L la longueur caractéristique (ici, le rayon d'une goutte). A l'échelle des pores, Bo=10^{-2}, la gravité est négligeable à l'échelle des pores.

1.3.4 Le rapport des viscosités

Le rapport des viscosités est défini par le rapport μ_o/μ_w

Le rapport de viscosité joue un rôle important dans la récupération assistée du pétrole. En effet, comme représenté sur la Figure 3, lors du « waterflooding », le front de séparation entre l'eau injecté et l'huile est plus ou moins étendu selon le rapport de viscosité.

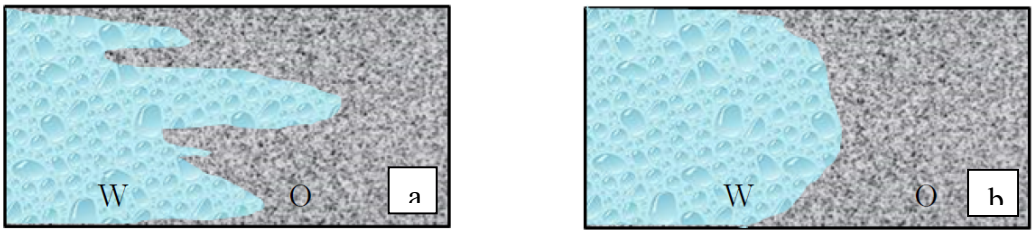


Figure 3 - Représentation schématique de l'effet du rapport des viscosités (R. T. Lenormand 1988) *a) rapport des viscosité élevé, front instable, b) viscosité de l'eau et de l'huile proche, font stable*

1.4 La pression capillaire en milieu poreux

Dans un milieu poreux, à l'échelle d'un volume élémentaire représentatif, la pression capillaire est définie comme étant la différence de pression entre la phase non mouillante (P_o) et la phase mouillante (P_w). Par convention la P_c est exprimée en fonction de la saturation du fluide mouillant S_w.

$$P_c(S_w) = P_o(S_w) - P_w(S_w) \tag{1.6}$$

1.4.1 Notion locale de pression capillaire

Localement la pression capillaire est reliée à la valeur de la tension interfaciale entre les deux fluides, à la mouillabilité de la surface solide ainsi qu'à la courbure des interfaces. Elle s'exprime par la loi de Young-Laplace :

$$P_c = P_1 - P_2 = \gamma\left(\frac{1}{R_1} - \frac{1}{R_2}\right) \tag{1.7}$$

Où R_1 et R_2 sont les deux rayons de courbures de l'interface et γ la tension interfaciale entre le fluide 1 et le fluide 2 (Figure 4). Dans un tube capillaire, la pression capillaire est inversement proportionnelle à la taille de tube (ascension capillaire, loi de Jurin)

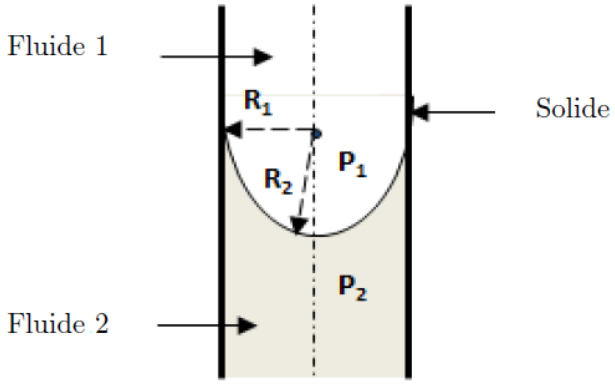


Figure 4 – Rayons de courbure de l'interface dans un capillaire

Le phénomène de capillarité est observable dans la nature de manière prépondérante (infiltration d'eau dans un mur, la sève montant dans les canaux des plantes et des arbres, le phénomène d'imbibition, …)

1.4.2 Les courbes de pression capillaires dans les milieux poreux

Pour un milieu poreux, on distingue plusieurs courbes de pression capillaire selon le type d'écoulement : drainage ou imbibition.

Un exemple de mise en place de la courbe de pression capillaire est celle de Zinszner et Pellerin (Zinszner 2007). La construction de la courbe suit les grandes étapes du remplissage d'un réservoir par de l'huile : drainage de l'huile expulsée par la roche mère et remplissant le réservoir. Imbibition de l'eau lors de la production.

Pour obtenir la courbe de pression capillaire, on effectue dans un premier temps un premier drainage, c'est-à-dire le déplacement du fluide mouillant (phase aqueuse) par le fluide non mouillant (phase huile). La courbe du premier drainage est représentée sur la Figure 5. Elle montre une diminution de la saturation en eau à partir d'une certaine valeur de pression capillaire appelé « pression d'accès ». La pression capillaire atteint ensuite son maximum à une valeur caractéristique de la saturation en eau appelée saturation irréductible en eau (S_{wi}).

On réalise ensuite une imbibition spontanée, c'est-à-dire le déplacement du fluide non mouillant par le fluide mouillant. Lorsque l'échantillon est initialement à S_{wi}, la pression capillaire est maximale et diminue avec l'augmentation de la saturation en eau. On observe

que la pression capillaire en imbibition est plus faible que la pression capillaire en drainage pour une saturation en eau donnée, il s'agit de *l'hystérésis capillaire*. Lorsque la pression capillaire devient nulle, autrement dit, lorsque la pression d'eau est égale à la pression d'huile, le milieu poreux est à saturation en huile résiduelle. C'est-à-dire que pour augmenter la saturation en eau dans le milieu il est nécessaire de forcer l'écoulement d'eau.

La dernière étape consiste à réaliser un deuxième drainage, identique au premier mais à partir de la saturation en huile résiduelle et non 100% en eau. La pression capillaire augmente avec l'augmentation de la saturation en huile. Cette augmentation est généralement plus importante que la pression capillaire en imbibition spontanée pour une même valeur de saturation en raison de l'hystérésis capillaire. La pression capillaire tend vers l'infini lorsque la saturation irréductible en eau est atteinte.

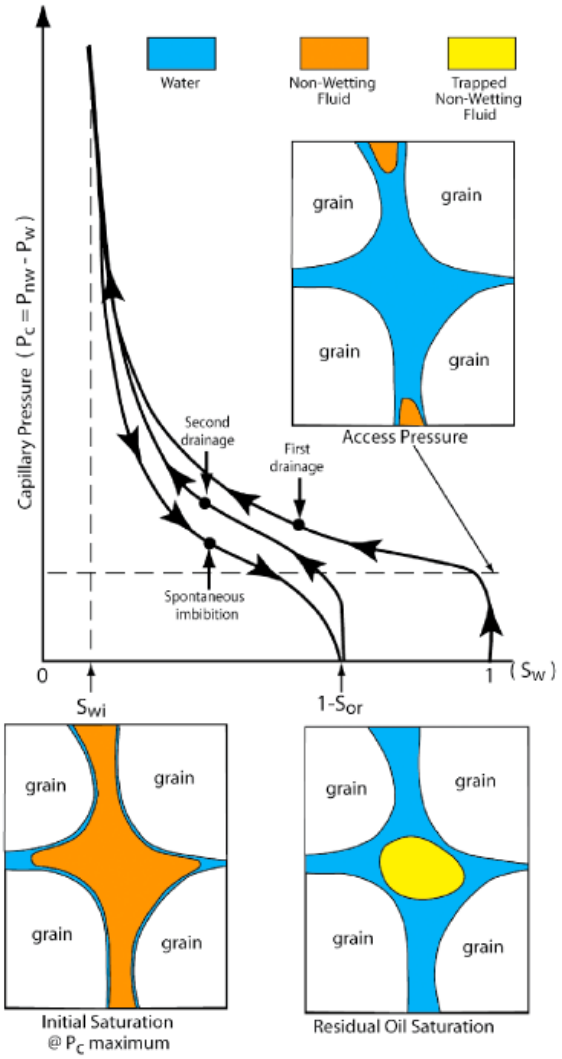


Figure 5 – Courbe de pression capillaire en drainage et en imbibition

(Zinszner 2007)

1.5 Application à l'EOR chimique tensioactif

Une fois la récupération secondaire réalisée suite à l'injection d'eau dans un réservoir pétrolier, on peut considérer pour les meilleurs cas que la saturation en huile atteint la saturation résiduelle. Pour cette valeur de saturation, on observe une déconnexion des ganglions d'huile dans le milieu poreux et par conséquent une perte de mobilité, ce qui conduit à la nullité de la perméabilité relative.

Afin d'étudier les mécanismes de mobilisation de cette huile résiduelle par injection de tensioactif, nous allons présenter les principales propriétés des molécules tensioactives.

1.5.1 Les types de tensioactifs

Les tensioactifs sont généralement des composés organiques amphiphiles s'absorbant sur une interface fluide/fluide. Ils permettent ainsi d'altérer les comportements aux interfaces, en particulier via l'abaissement de la tension interfaciale. Ils peuvent aussi s'adsorber sur les surfaces solides.

Les tensioactifs sont des molécules de compositions très variées. Ils possèdent en général une queue hydrocarbonée et une tête polaire hydrophile. Ils sont par conséquent à la fois solubles dans les solvants organiques et dans l'eau. Ainsi, se plaçant à l'interface entre l'eau et l'huile, les tensioactifs permettent d'abaisser la tension interfaciale entre l'huile et l'eau de manière très importante.

Pour les applications pétrolières, ils peuvent permettre de mobiliser l'huile résiduelle par suppression du piégeage capillaire.

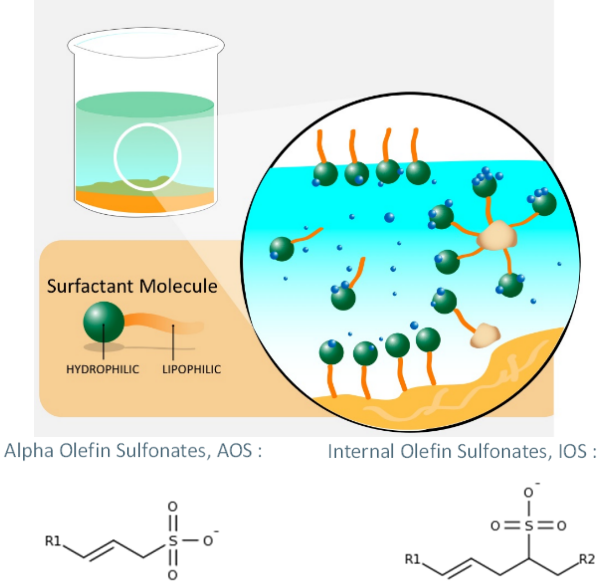


Figure 6 - Exemple de deux familles de surfactants utilisés pour l'EOR chimique

Les tensioactifs sont classés par la nature de la tête hydrophile pouvant être anionique, cationique ou non ionique. Les tensioactifs anioniques sont les plus utilisés en EOR chimique du fait de leur faible adsorption dans les grès possédant une charge de surface globalement négative.

1.5.2 Caractéristiques des tensioactifs

La balance hydrophile-lipophile (HLB)

Ce nombre indique la tendance préférentielle du tensioactif pour se solubiliser dans l'huile ou dans l'eau et ainsi former plutôt des émulsions eau dans huile ou huile dans eau. Une faible valeur de la HLB est assignée aux surfactants plus solubles dans l'huile. Lorsque la salinité de l'eau est faible, l'utilisation d'un tensioactif présentant une faible HLB (lipophile) est plus judicieuse. A l'inverse, on utilisera un tensioactif à fort HLB lorsque la salinité de la phase aqueuse est élevée.

La concentration micellaire critique (CMC)

La CMC caractérise la concentration critique de tensioactif critique pour laquelle on observe l'agrégat des molécules de tensioactifs en solution et non à l'interface, n'ayant alors

plus d'effet sur la tension interfaciale. C'est une grandeur importante puisqu'elle permet de déterminer la concentration en surfactant optimale.

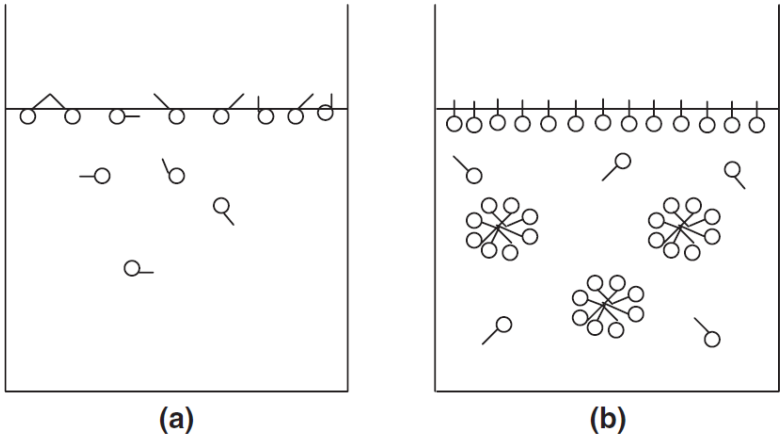


Figure 7- Distribution des molécules de tensioactifs avant (a) et après (b) la CMC (Sheng 2011)

Pour les tensioactifs communément utilisés en EOR, la concentration micellaire critique est faible, de l'ordre de 10^{-5} à 10^{-4} mol/L (Green 1998).

1.5.3 Formulation des solutions tensioactives : étude des microémulsions

Les tensioactifs en agissant à l'interface entre l'huile et l'eau permettent l'abaissement de la tension interfaciale. Dans des conditions bien définies (concentration, salinité, température), l'équilibre entre la phase aqueuse et la phase huile entraîne l'apparition d'une troisième phase dite de microémulsion. Les microémulsions sont thermodynamiquement stables, et sont constituées par un mélange d'huile de saumure et de tensioactif, obtenues généralement par combinaison avec un co-surfactant (généralement un alcool). Dans ces conditions, la tension interfactiale entre l'eau et l'huile est la plus basse.

Le comportement d'une solution tensioactive est fortement affecté par la salinité de la phase aqueuse. En augmentant la salinité on observe une diminution de la solubilité du surfactant anionique dans la solution. Winsor dans ses travaux en 1948 (Winsor 1948) distingue trois types émulsions.

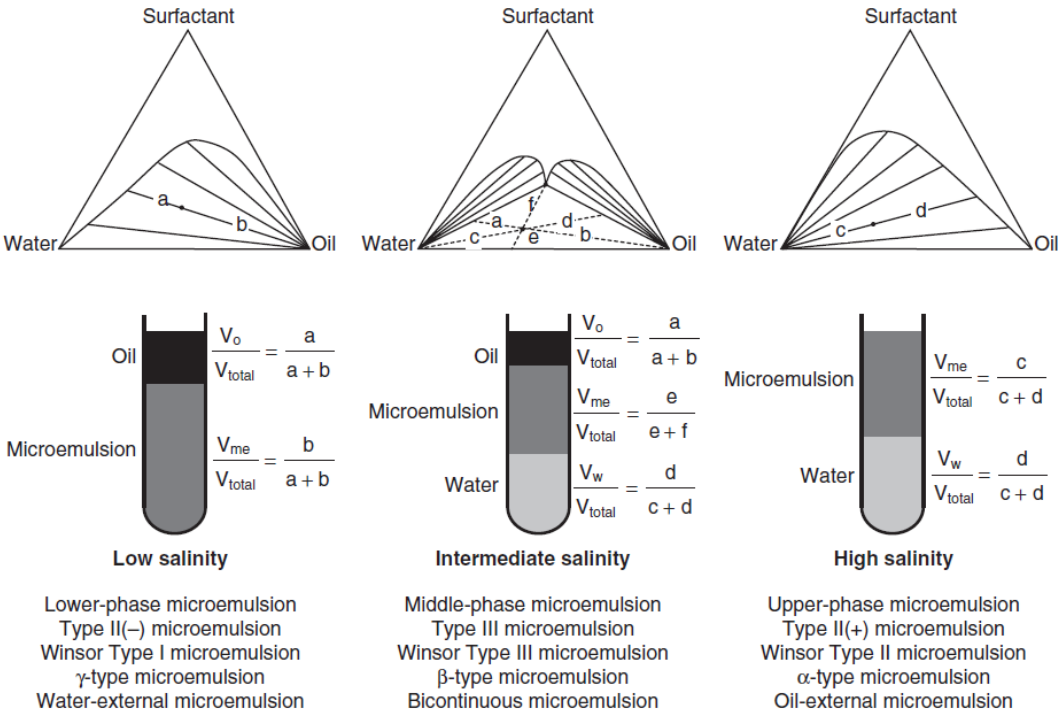


Figure 8- Types de microémulsions selon la salinité de la phase aqueuses (Sheng 2011)

On observe sur la Figure 8, l'influence de la salinité de la phase aqueuse sur la microémulsion dans le cas d'un tensioactif à HLB élevée (hydrophile). Pour une salinité faible, l'ensemble du tensioactif se concentre dans la phase aqueuse où est formée la microémulsion de type Winsor I. Lorsque la salinité est élevée, la microémulsion se situe dans la phase huile, microémulsion type Winsor II.

A salinité intermédiaire, la phase de microémulsion est médiane et composée d'un mélange d'eau, d'huile et de tensioactif. Il s'agit de la microémulsion de type Winsor III pour laquelle on observe donc une « solubilisation » des différentes phases entre elles.

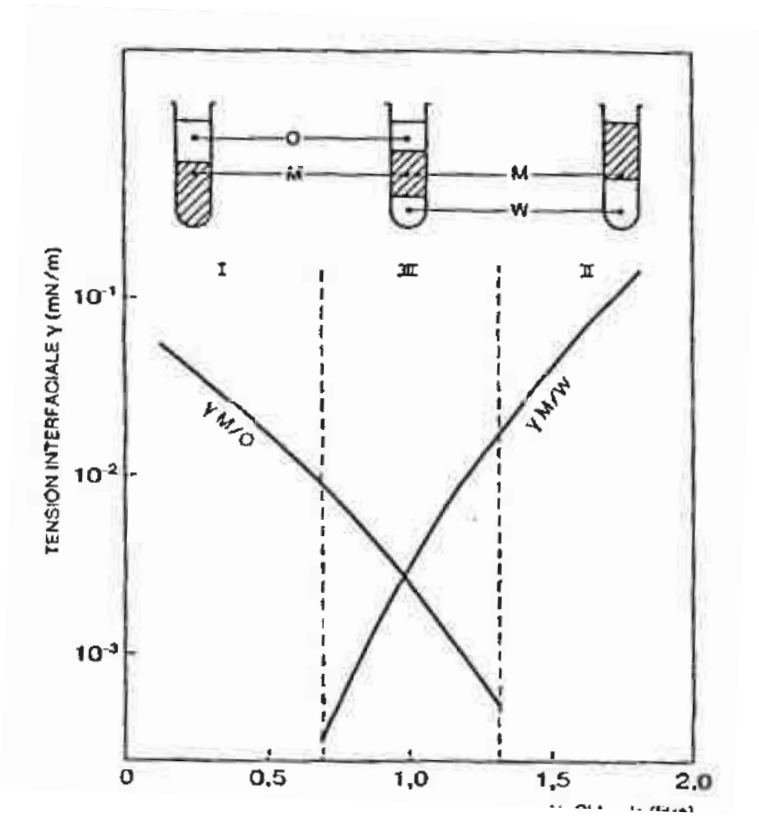


Figure 9- Evolution des tensions interfaciales en fonction de la salinité (Rouaud 1990)

C'est en se plaçant dans la configuration d'une solution de tensioactif du type Winsor III, qu'on obtient une formulation optimale car dans ces conditions la tension interfaciale entre l'huile et l'eau est minimale.

Il est également à noter que l'apparition de cette phase de microémulsion est facilement observable optiquement. Cette propriété a conduit à la sélection des formulations optimales de tensioactif pour la récupération assistée du pétrole par l'observation. En effet, la stratégie consiste à préparer de nombreux tubes à essais de faible volume avec différentes conditions, de concentration en sel, de type de tensioactifs et de température pour une huile donnée. On cherche alors par l'observation le tube présentant une phase Winsor III.

Nous reviendrons sur cette méthode dans le chapitre 2 présentant les propriétés physico-chimique des fluides et du tensioactif sélectionnés pour cette thèse.

1.6 Répartition eau/huile en milieu poreux après l'injection d'eau

1.6.1 Les courbes de désaturation capillaire

La courbe de désaturation capillaire ou CDC est une représentation macroscopique de la variation de la saturation en huile résiduelle en fonction du nombre capillaire de balayage à l'eau.

Les propriétés de cette courbe ont beaucoup été étudiées depuis les années 70 avec notamment les travaux de Stegemeier (Stegemeier 1977) qui synthétise et compare les résultats de différents auteurs sur différentes roches.

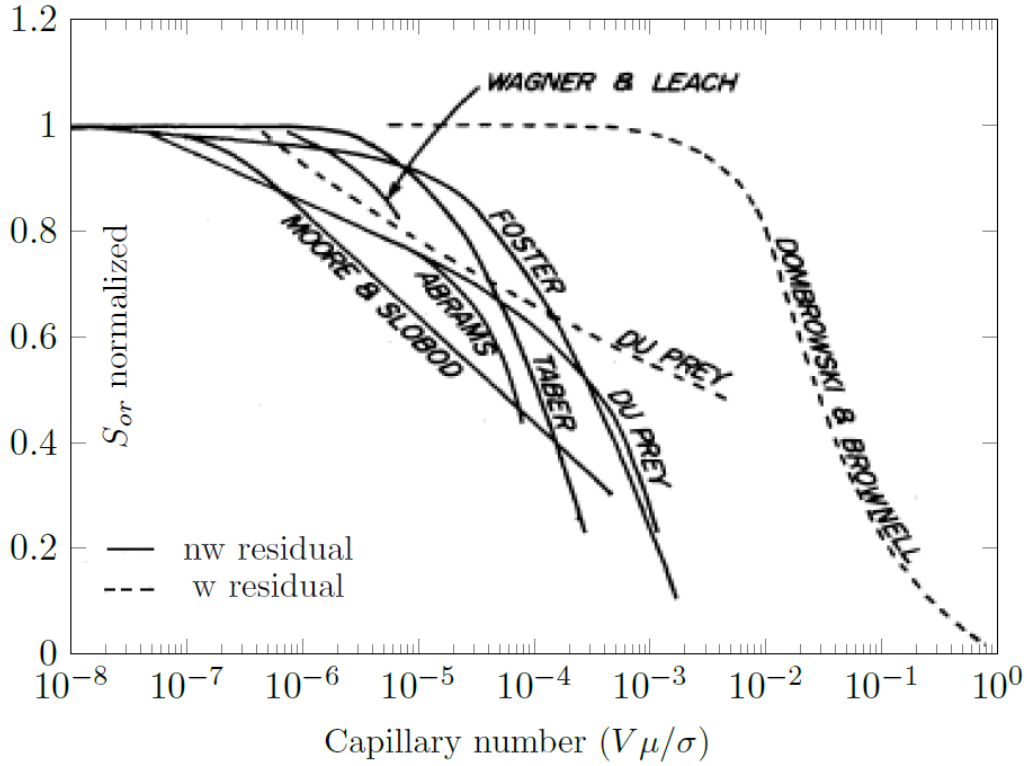


Figure 10 – Courbes de désaturation capillaires obtenues par différents auteurs et synthétisée par (Stegemeier 1977)

La saturation en huile normalisée représente la valeur de la saturation en huile divisée par la valeur plateau de la saturation à faible nombre capillaire (10^{-8} 10^{-7}).

En dehors de l'étude de Dombrowski et Brownell (Dombrowski 1954), on observe une tendance générale assez proche pour les différents auteurs. La saturation résiduelle présente

tout d'abord un plateau. Puis on observe dans tous les cas, un nombre capillaire seuil pour lequel la saturation commence à décroitre.

La conséquence pratique est que pour obtenir une récupération satisfaisante sur champ (Sor normalisé inférieur à 0,2), le nombre capillaire doit être proche de 10^{-3}. L'optimisation des fluides en récupération tertiaire pour l'EOR chimique (utilisation de polymère ou de tensioactif) permet d'améliorer la récupération de l'huile (diminuer notablement la saturation en huile résiduelle), soit en augmentant la viscosité du fluide (en utilisant un polymère plus visqueux que l'eau), soit en diminuant la tension interfaciale (en utilisant une solution tensioactive).

1.6.2 Observations à l'échelle des pores

L'amélioration des techniques expérimentales a permis de rendre possible l'observation in situ de la répartition de l'huile en milieu poreux. L'observation dans les milieux poreux modèles transparents (gravé sur verre par exemple), ou encore la tomographie à rayons X sont des techniques donnant la répartition eau/huile dans la structure poreuse.

Etude en milieux poreux transparents

Les milieux poreux réalisés à partir d'un empilement de billes de verre sont d'un grand intérêt, d'une part à cause de la facilité de mise en œuvre, et d'autre part car ils permettent de construire des milieux poreux représentatifs en 3 dimensions.

Dès 1978, Ng *et al.* (K. D. Ng 1978) observent la mobilisation d'un ganglion d'huile au centre d'un tas de billes de verre mono-disperses transparentes. Ce ganglion est soumis à un écoulement d'eau dont le débit augmente progressivement jusqu'à mobilisation. Les travaux montrent que la vitesse de mobilisation est inversement proportionnelle à la viscosité de l'huile et à la longueur de ce ganglion.

Datta *et al*. (Datta 2013), développent quant à eux une approche permettant de visualiser les écoulements de deux fluides non miscibles dans un milieu poreux constitué également d'un empilement de billes de verre à l'aide de la microscopie confocale. L'objectif est d'étudier l'influence du nombre capillaire sur la saturation en huile résiduelle.

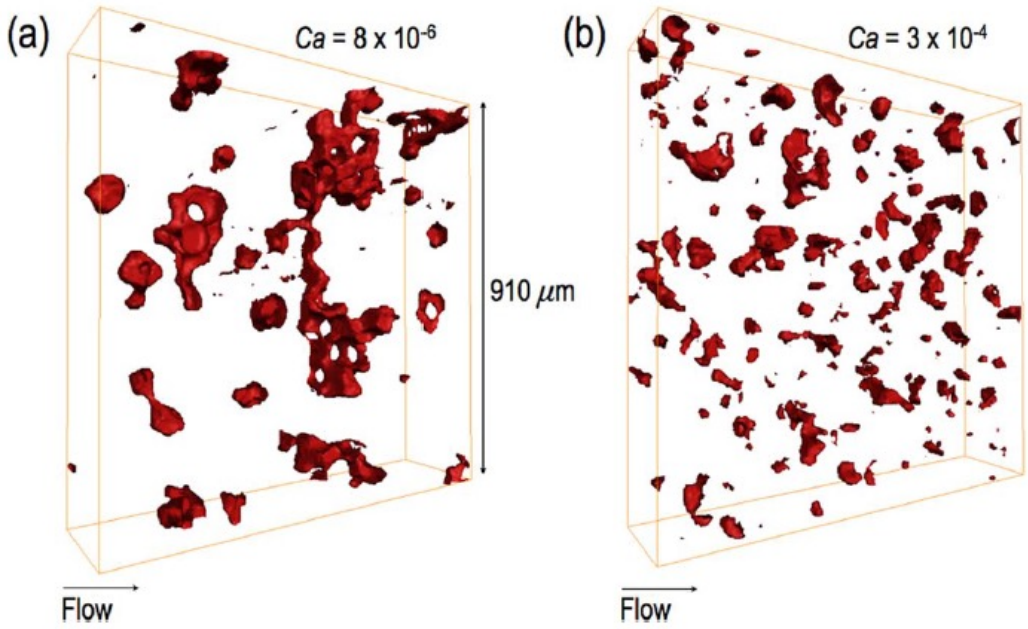


Figure 11- Structure des ganglions d'huile dans un milieu poreux 3-D constitué de billes de verre (Datta 2013)

Les ganglions d'huile piégés dans le milieu poreux sont représentés en rouge (Figure 11). Lorsque le nombre capillaire est faible les ganglions sont de grande taille et peuvent s'étendre sur plusieurs pores. A l'inverse en augmentant le nombre capillaire, la saturation en huile résiduelle dans l'échantillon est faible, les ganglions sont plus petits et ramifiés et sont répartis de manière plus homogène.

Cuenca *et al* (Cuenca 2013) présentent une étude des phénomènes de drainage dans des micromodèles bidimensionnels de milieu poreux à faible nombre capillaire communément rencontrés lors des opérations d'extraction pétrolière. Montrant ainsi la pertinence de la notion de courbes de désaturation capillaire non seulement à l'échelle de Darcy mais aussi à l'échelle locale.

Milieux poreux naturels

Suite au développement continu ces trente dernières années des techniques d'imageries à rayon X, l'étude des écoulements dans les milieux poreux réels est devenue possible à l'échelle du pore. On peut à l'aide d'une radiographie à rayons X visualiser à l'échelle d'une carotte l'organisation du réseau poreux, visualiser les saturations en eau et en huile, les phénomènes de digitations visqueuses ainsi que les fronts des différents fluides non

miscibles. De façon plus détaillé, la tomographie à rayons X consiste à multiplier les clichés radiographiques 2D sous plusieurs angles et, grâce à des algorithmes de reconstruction, à obtenir une image à trois dimensions. La microtomographie à rayon X permet de décrire les propriétés des écoulements jusqu'à l'échelle du micromètre et donc de décrire au niveau des pores la distribution des ganglions d'huile.

Youssef *et al.* (Youssef 2007), a pu montrer à l'aide de la microtomographie la distribution et la forme des ganglions d'huile piégés lorsque la saturation en huile résiduelle est atteinte dans un échantillon de grès de Fontainebleau.

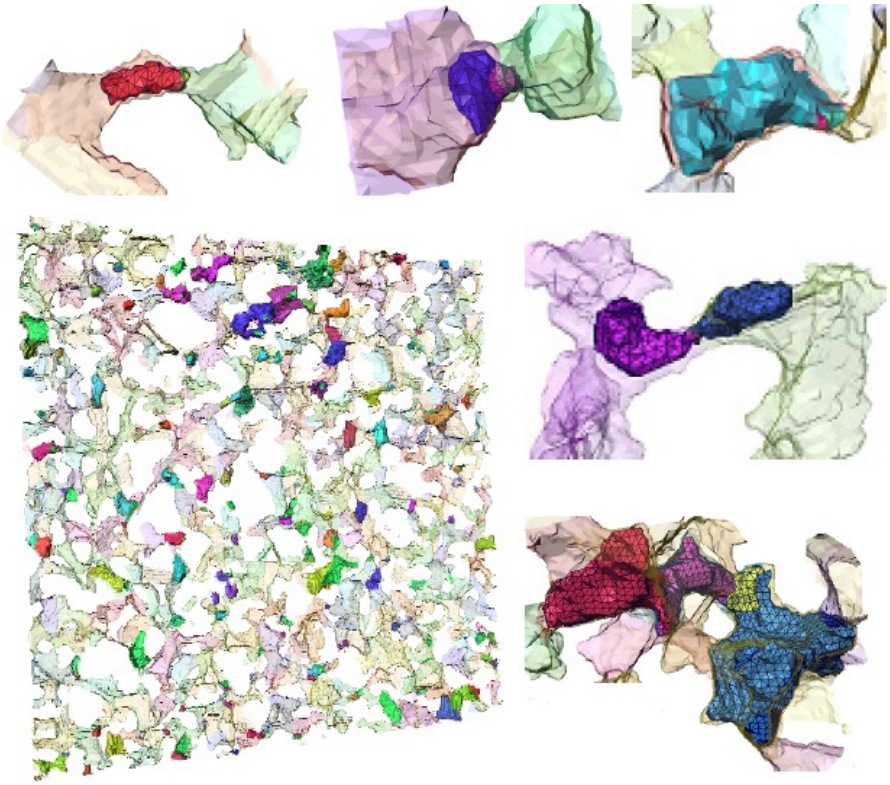


Figure 12 – Distribution à l'échelle microscopique de l'huile piégée après imbibition spontanée (Youssef 2007)

Ces travaux ont été complétés en 2015 par une étude de la distribution des ganglions sur des échantillons de grès de natures différentes (Figure 13) par microtomographie.

Les ganglions d'huile sont distribués dans l'espace poral (chaque couleur représente un ganglion) et sont piégés selon des configurations particulières : emprisonnés dans un canal, occupant totalement un pore, regroupés de part et d'autre d'un pore et interconnectés. D'autre

part, on observe clairement que lorsque la saturation en huile résiduelle est atteinte, les ganglions d'huile deviennent déconnectés, il n'existe plus de réseau continu d'huile.

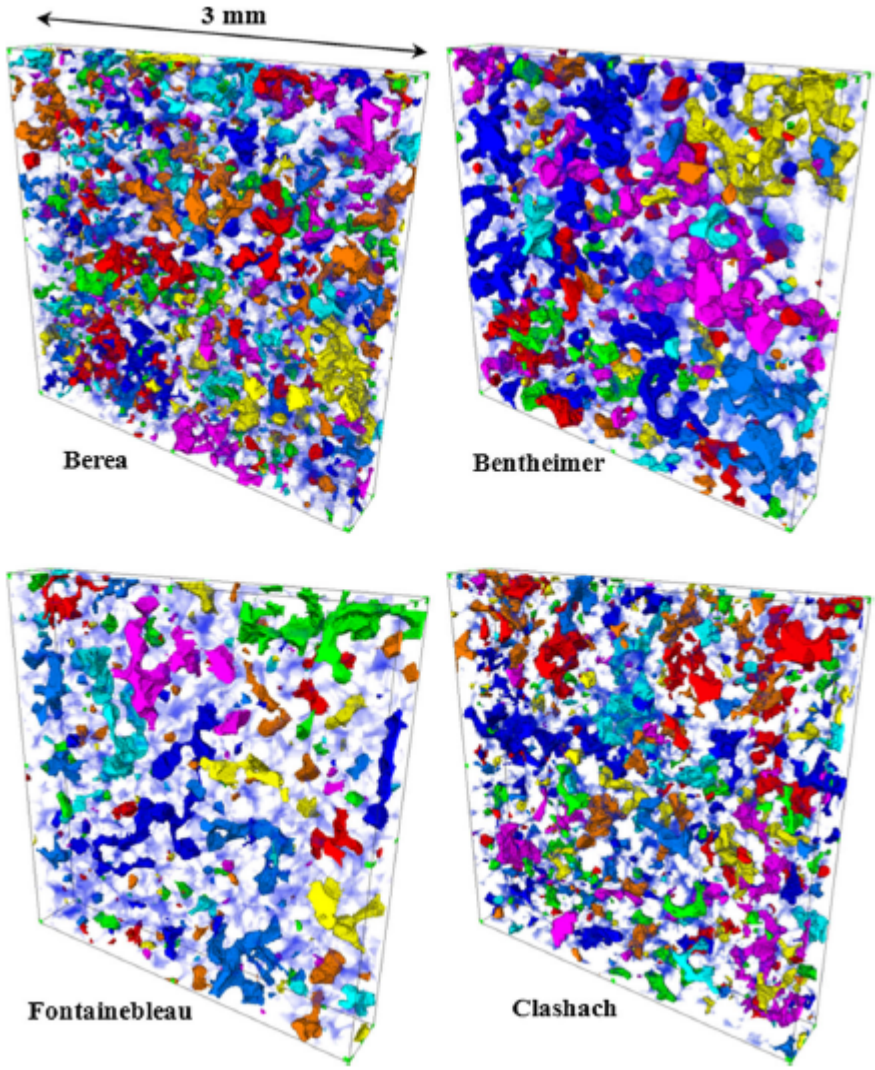


Figure 13 : Distribution de la phase huile à Sor pour 4 types de grès naturels (Youssef 2007).

Conditions de dépiégeage d'un ganglion

A partir des images de répartition de la phase huile dans le milieu poreux, on peut évaluer la condition de dépiégeage d'un ganglion. En effet, une fois la saturation résiduelle atteinte pour des roches mouillables à l'eau, la phase huile n'est plus continue dans le milieu poreux mais se compose d'un ensemble de ganglions d'huile répartis dans la structure poreuse. Lors d'une expérience d'écoulement de balayage à l'eau, la force de dépiégeage est créée par la différence de pression au bord des ganglions d'huile (de longueur L) créée par l'écoulement d'eau dans le milieu poreux. Les forces de piégeages sont les forces capillaires

qui proviennent des restrictions géométriques dans le milieu poreux (noté r_s) et qui créent une barrière de pression de Laplace due à la tension interfaciale eau-huile. Le schéma suivant synthétise les bilans de force pour un ganglion pour un cas de géométrie très simplifiée :

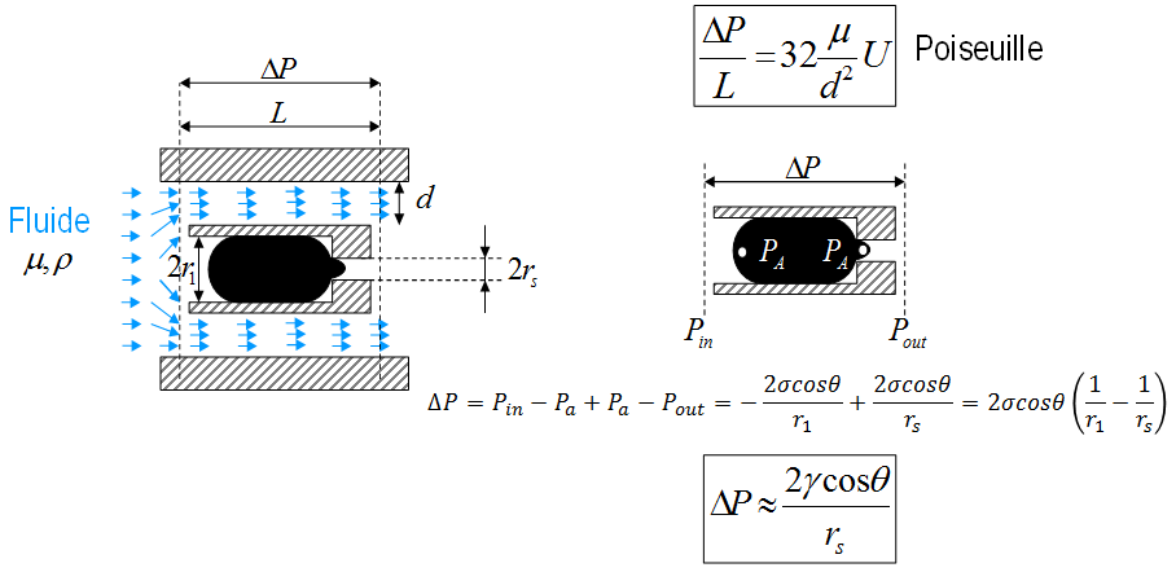


Figure 14- Bilan de force sur un ganglion

On considère un écoulement de type poiseuille dans 2 tubes de part et d'autre d'un ganglion d'huile bloqué dans un pore où le seuil de pore à droite est petit.

En écrivant l'égalité des pressions au seuil de dépiégeage, on obtient une relation d'équilibre.

$$Nc_c = \frac{\mu U_0}{\gamma} = \frac{\phi \cos\theta d^2}{16 L r_s} \tag{1.8}$$

U_0 est la vitesse de Darcy, c'est-à-dire la vitesse locale U multipliée par la porosité ϕ, d correspond à la taille typique d'écoulement de l'eau donnant le gradient de pression, r_s est la taille du seuil de pore bloquant le ganglion.

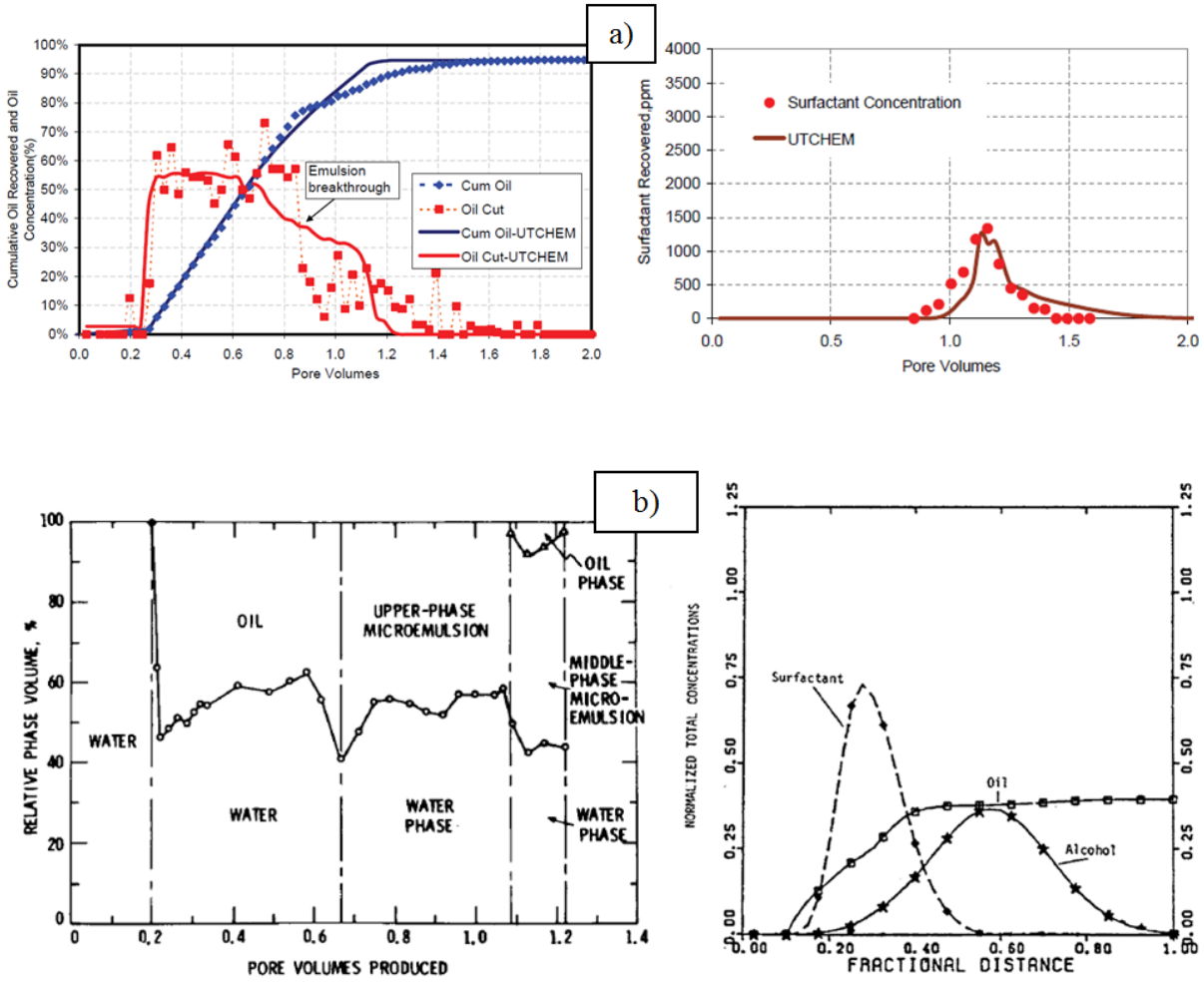
Cette relation fait apparaître la valeur du nombre capillaire critique pour dépiéger un ganglion. Ce nombre dépend de la taille du ganglion. Plus le ganglion est petit et plus le nombre capillaire critique est élevé.

1.7 Mobilité de l'huile après dépiégeage

Une fois le nombre capillaire critique atteint, l'huile est dé-piégée et elle se déplace dans le milieu poreux. Cependant la vitesse moyenne de déplacement de l'huile est mal connue car dans le cas d'une phase discontinue, le cadre de Darcy diphasique ne s'applique plus et prédit une vitesse nulle

1.7.1 Déplacement de l'huile et du tensioactif dans un milieu poreux réel

Il existe assez peu de travaux dans la littérature sur la vitesse de déplacement des phases déconnectées. Les travaux concernant la récupération assistée d'huile par injection de tensioactifs montrent indirectement la vitesse de production d'huile. En effet, en suivant expérimentalement la production d'huile en sortie d'échantillon dans le temps, on peut remonter à sa vitesse de déplacement.



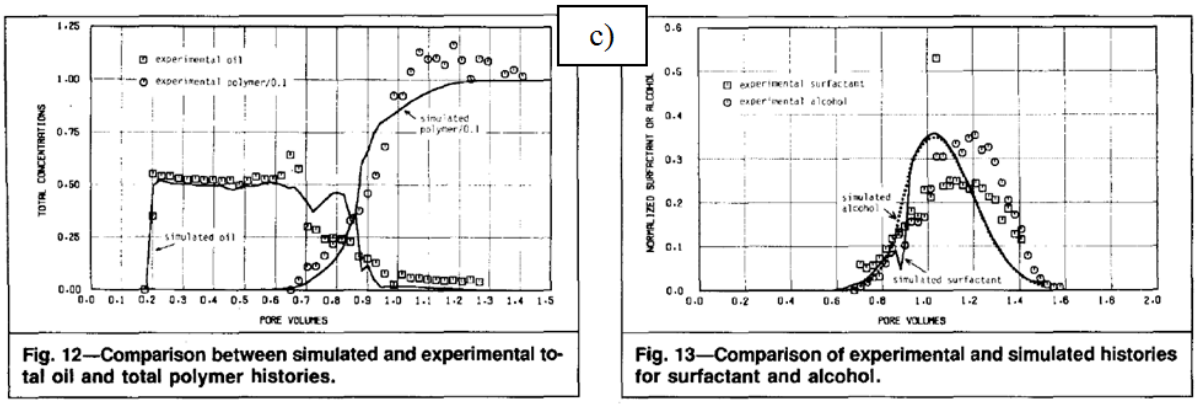


Fig. 12—Comparison between simulated and experimental total oil and total polymer histories.

Fig. 13—Comparison of experimental and simulated histories for surfactant and alcohol.

Figure 15- Synthèse bibliographique des courbes de production d'huile et de tensioactif *a)* (Mohammadi 2008), *b)* (Gupta 1982), *c)* (Camilleri 1987)

Comme on peut le voir sur la Figure 15 a) par exemple, Mohammadi *et al*, (Mohammadi 2008), ont balayé un échantillon de roche initialement préparée à Sor avec une solution de tensioactif. A l'instant t=0, le bouchon de tensioactif est injecté et après injection de 0,2 volume de pore, l'huile est produite en sortie pendant une durée d'un VP. Par contre, toujours sur la Figure 15 a), ces auteurs observent une sortie du tensioactif bien plus tardive, ce qui est assez étonnant car, pour que l'huile soit dépiégée, il faut que le tensioactif ait contacté les ganglions, et donc on pourrait s'attendre à une sortie concomitante de l'huile et du tensioactif.

Il semble donc y avoir dans ces systèmes une dynamique et un couplage complexe entre l'écoulement du tensioactif et l'huile. Un des objectifs de la thèse est de tenter d'apporter quelques éclaircissements sur ces mécanismes.

1.7.2 Evolution du cadre de darcy diphasique en deçà de la saturation en huile résiduelle

Pour interpréter les résultats d'écoulement en échantillon de roche, une approche classique est d'utiliser le cadre de Darcy diphasique en modifiant les perméabilités relatives pour retrouver les résultats de production d'huile en sortie. Ceci conduit à définir de nouveaux jeux de perméabilités relatives.

P. Shen *et al* (Shen 2010) ont mesuré systématiquement les courbes de perméabilités relatives pour des écoulements à grand nombre capillaire. Ils mettent en place une procédure expérimentale pour étudier les variations des perméabilités relatives en fonction de la tension

interfaciale. Shen *et al* (Shen 2010) retrouvent ainsi les courbes de perméabilité relative en eau et en huile pour différentes valeurs de tension interfaciale (Figure 16).

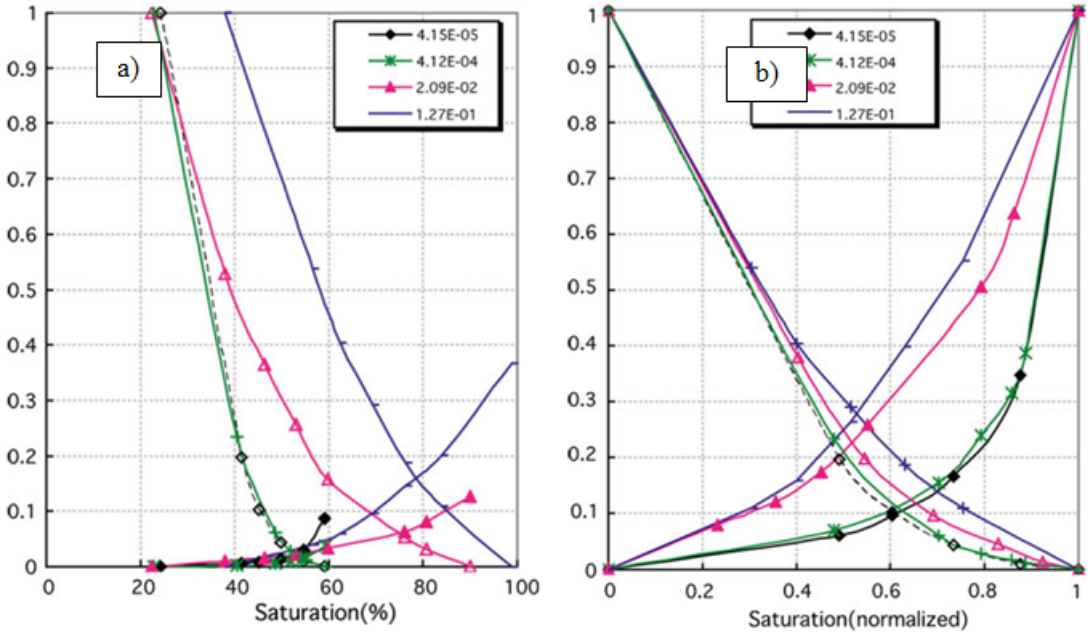


Figure 16- Courbes de perméabilités relatives obtenues pour différentes valeurs de nombres capillaires en fonction a) de la saturation en eau b) de la saturation en eau normalisée (Shen 2010)

On observe un décalage de la valeur de la saturation en huile résiduelle lorsque le nombre capillaire augmente ainsi qu'une variation de la forme des courbes de perméabilité relative d'après la figure16a). La figure16b) est obtenue à partir des mêmes résultats mais elle représente la perméabilité relative en fonction de la saturation en eau normalisée. Cette courbe montre que selon les valeurs du nombre capillaire, les courbes de perméabilité n'ont pas la même forme. Shen distingue en particulier une valeur de nombre capillaire (ou tension interfaciale) identifiant le changement de la forme des courbes de perméabilité relative.

1.8 Objectifs de la thèse

L'objectif de ces travaux de thèse est d'étudier expérimentalement la mobilisation d'huile en milieu poreux pour les basses saturations en huile lorsque l'huile n'est plus continue, mais sous forme de ganglions. Comme nous l'avons vu dans l'introduction, dans l'approche classique cette huile n'est plus mobile et son débit est nul. Or, en injectant des produits tensioactifs, une partie de cette huile est remise en production. Nous étudierons donc le couplage entre injection de surfactant et mobilisation d'huile, deux phénomènes inhérents à la production d'huile dans le cadre de la récupération assistée du pétrole avec l'utilisation de tensioactif.

Dans le chapitre 2, nous étudierons tout d'abord l'écoulement d'une formulation tensioactive dans un grès naturel. Nous étudierons expérimentalement les propriétés de transport en milieu poreux naturel d'un tensioactif anionique dans une solution aqueuse. Il sera tout d'abord question d'étudier la dispersion propre à un grès en injectant un traceur passif servant de référence pour étudier le transport dans notre milieu. Nous injecterons ensuite la formulation tensioactive choisie. L'objectif est de pouvoir modéliser le transport du tensioactif en ajoutant un terme adapté d'adsorption/désorption dans l'équation classique de convection dispersion.

Le chapitre 3, reprendra les études réalisées dans le chapitre 2 mais cette fois en présence d'huile. Nous déterminerons la courbe de désaturation capillaire de notre système roche/fluides par plusieurs méthodes expérimentales, les échantillons seront alors préparés à saturation en huile résiduelle. Dans ces conditions, la formulation tensioactive sera injectée dans le système à des nombres capillaires pour lesquelles l'huile n'est pas produite. Il sera alors possible d'étudier le transport du tensioactif en présence d'huile. Cette étude nous permettra de déterminer les paramètres du modèle de transport de tensioactifs en présence d'huile.

Dans le chapitre 4, nous nous intéresserons au déplacement de ganglions d'huile en milieu poreux. Nous utiliserons la microfluidique pour étudier le mouvement d'un ganglion d'huile unique soumis à un balayage à l'eau avec ou sans tensioactifs. A travers les observations expérimentales, nous tenterons de comprendre le mode de transport de l'huile dans ces conditions.

Dans le chapitre 5, nous reviendrons à l'échelle de l'échantillon de roche et nous étudierons à la fois le transport de tensioactif et la production d'huile. L'objectif est de mieux comprendre les paramètres contrôlant la production d'huile.

Nous terminerons notre étude par une synthèse et des perspectives.

Chapitre 2 – Transport d'un tensioactif en milieu poreux naturel

Dans ce chapitre, nous étudions le déplacement en milieu poreux d'un tensioactif anionique représentatif des familles de tensioactifs utilisés pour l'EOR. Nous commencerons par le cas simple d'un milieu poreux sans présence d'huile. L'objectif est d'étudier en détail les effets de dispersivité et d'adsorption du tensioactif dans ce premier cas. Ces premières expériences nous permettront de séparer et quantifier proprement dispersivité du milieu poreux et adsorption du tensioactif. Le prochain chapitre étudiera le transport dans le cas diphasique eau/huile.

2.1 Le phénomène de dispersion

2.1.1 Définition de la dispersion hydrodynamique

Considérons un écoulement d'un fluide contenant un soluté de concentration C dans un milieu poreux contenant préalablement le même fluide sans soluté. Ce soluté sera considéré comme étant un traceur identifié par différents paramètres physiques : sa densité, sa conductivité, son absorbance à une longueur d'onde spécifique. L'expérience montre que lorsque l'ensemble du fluide est en mouvement, le traceur s'étale au niveau du front. L'étalement du traceur est appelé *dispersion hydrodynamique.*

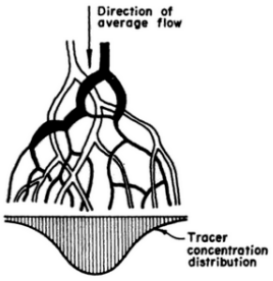


Figure 17 – Mélange de deux fluides au cours de l'écoulement d'un traceur en milieu poreux (Bear 1972)

Si initialement la solution contenant le traceur occupe une région séparée par une interface droite de l'autre fluide ne contenant pas de traceur, il se crée une *zone de transition*

dans laquelle la concentration en traceur varie de la concentration du fluide le contenant à 0, soit la concentration de traceur contenu dans l'autre fluide.

L'une des premières observations de ce phénomène est faite par Slichter (Slichter 1905) utilisant un traceur électrolytique s'écoulant dans une aquifère. Il remarque que la concentration du traceur en sortie augmente graduellement mettant ainsi en évidence un gradient de concentration du traceur dans la direction de l'écoulement. Il remarque d'autre part que la dispersion hydrodynamique s'allonge au cours de la propagation du traceur.

Afin d'étudier la dispersion, Bear (Bear 1972) réalise une colonne cylindrique dans laquelle sont empilés des grains de sables homogènes. Initialement, le cylindre est saturé en eau. A t=0, il commence l'injection d'une eau marquée par un traceur à la concentration C_1. Il analyse en sortie du cylindre l'évolution de la concentration en traceur au cours du temps. Il trace alors la *« breakthrough curve »* ou *courbe de percée* du traceur, c'est-à-dire la valeur de la concentration en traceur adimensionnée ($\bar{C}(t) = C(t)/C_1$ en fonction du temps adimensionné ($\bar{t} = Q/V_o$ ou Q est le débit d'injection et V_o, le volume de pore du l'empilement de grains de sable).

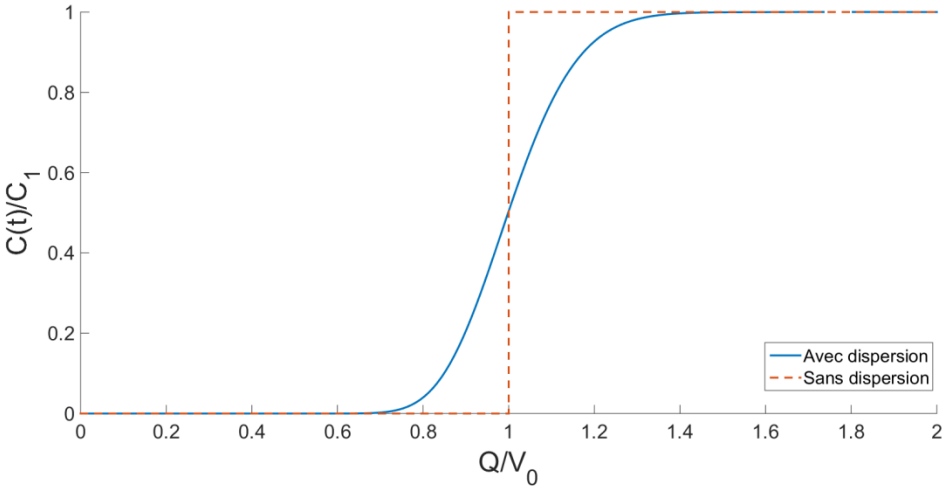


Figure 18 – Courbe de percée dans le cas d'un écoulement unidimensionnel dans un empilement de grains de sable

En absence de dispersion, la courbe de percée aurait la forme de la ligne pointillée sur la Figure 18. Mais à cause du phénomène de dispersion hydrodynamique, la courbe a une forme en S.

Il existe deux phénomènes de transports responsables de la dispersion hydrodynamique, la *convection* et la *diffusion moléculaire.* Un milieu poreux est un système fait d'interconnections et de pores induisant ainsi une grande variabilité des vitesses locales. La convection participe donc à un brassage du traceur par une grande hétérogénéité du champ de vitesse locale conduisant par conséquent à un brassage complexe du traceur. Le gradient de concentration du traceur transporté par le phénomène de convection est donc complexe.

En plus de la convection, on observe une diffusion moléculaire du traceur à l'interface entre les fluides résultant du gradient de concentration. La séparation entre les phénomènes de convection et de diffusion moléculaire est artificielle car la dispersion hydrodynamique inclut les deux phénomènes de manière indissociable. On peut donc écrire que la dispersion hydrodynamique s'écrit $D = D_m + D_L$, la somme des phénomènes de diffusion moléculaire (axiale) et de dispersion par convection (longitudinale). Ainsi, Scheidegger (Scheidegger 1985) montre que la dispersion longitudinale entrainée par la convection est proportionnelle à la vitesse interstitielle (V) du fluide s'écoulant dans le milieu poreux, tel que :

$$D_L \sim \alpha V \tag{2.1}$$

Par analyse dimensionnelle, on s'aperçoit que α est homogène à une longueur qui est caractéristique du milieu poreux considéré, il s'agit de la *dispersivité* du milieu poreux.

D'autre auteurs par la suite, tel que Ebach et White (Ebach 1958), Blackwell (Blackwell 1959) et Pfannkuch (Pfannkuch 1963) s'attarderont sur ce résultat et montreront que finalement la dispersion dans un milieu poreux s'écrit sous la forme :

$$D = D_m + \alpha V^n \tag{2.2}$$

2.1.2 Dispersion dans un tube capillaire

Le modèle le plus simple de milieu poreux est une association en série de tubes capillaires. Taylor et Aris (Taylor 1953) (Aris 1955) ont étudié le déplacement d'un fluide contenant un traceur dans un tube capillaire de rayon R. Le fluide avec le traceur ayant la même masse volumique et la même viscosité du fluide pur. La dispersion du traceur est uniquement dû à un couplage entre la distribution parabolique des vitesses dans le tube capillaire et la diffusion moléculaire. Il trouve ainsi que le système peut se ramener à un système à une dimension de coefficient de dispersion hydrodynamique longitudinal :

$$D_{Taylor} = \frac{V^2 L}{48 D_m} \tag{2.3}$$

Avec V la vitesse moyenne du fluide et L la longueur du tube capillaire

2.2 Montage expérimental, fluides et échantillons

Nous allons étudier la dispersion d'une solution de tensioactif dans un milieu poreux naturel. Pour réaliser cette étude, un montage expérimental spécifique a été réalisé.

2.2.1 Montage expérimental

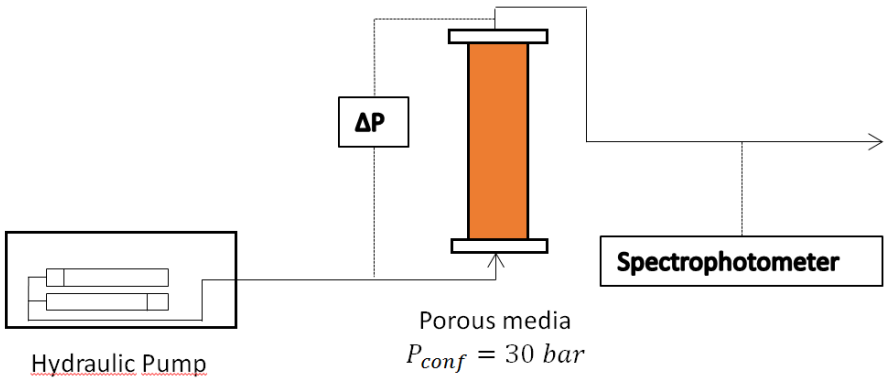


Figure 19 – Montage expérimental

Le dispositif comprend une pompe hydraulique Pharmacia (de type double pouce seringue) pour l'injection des solutions dans le milieu poreux, une cellule de type Hassler

avec l'échantillon de roche confiné sous une pression de 30 bar. La pression est mesurée aux bornes de la cellule à l'aide d'un capteur différentiel de pression 0-400 mbar.

Figure 20 – Photographies des composants du montage.
a) Pompe Pharmacia, b) Cellule Hassler

L'originalité de la démarche expérimentale est que les fluides sont analysés en sortie de cellule à l'aide d'un spectrophotomètre en ligne JASCO.

Figure 21 – Photographies des composants du montage. Spectrophotomètre en ligne Jasco.

2.2.2 Fluides utilisés

La saumure utilisée est un mélange d'eau et de chlorure de sodium de concentration 5 g/L en solution. Il est important d'utiliser une saumure et non de l'eau en absence de sel, et ce, afin d'éviter de dénaturer la roche, en particulier les argiles (Gravelle 2011) (Musharova 2012). (Khilar K.C. 1984).

Afin d'étudier le transport d'un traceur passif, on ajoute à la saumure de l'iodure de potassium (KI) à une concentration de 20 mg/L Ce composé à la particularité d'absorber dans l'UV et de n'avoir aucune interaction avec la roche et l'huile.

Le tensioactif utilisé est le SDBS (Sodium Dodécyl Benzène Sulfonate), dont la Figure 22 reporte la structure chimique.

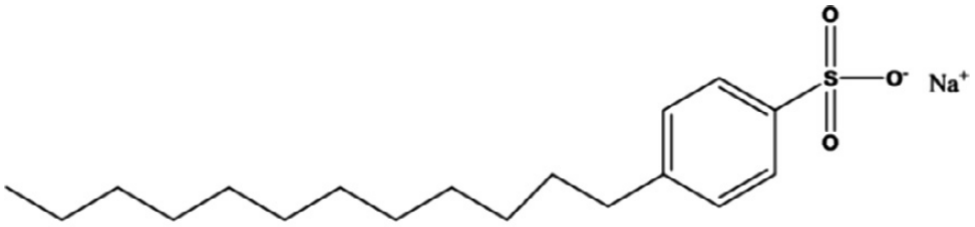


Figure 22 – Structure du SDBS

Il s'agit d'un tensioactif anionique fréquemment utilisé dans les laboratoires de recherche. Son cycle aromatique lui permet d'adsorber la lumière dans l'UV. On choisit une concentration en SDBS de référence de 1 g/L : ainsi, il est aisé de dissoudre le tensioactif en solution, le lot provenant d'Aldrich étant de forme floculeuse il se dissout difficilement. Cette concentration a également été choisie car elle permet de ne pas saturer le signal d'absorbance du spectrophotomètre Jasco.

L'huile utilisée dans tous les travaux présentés est le dodécane de masse volumique $\rho_{huile} = 750\ kg/m^3$ et de viscosité $\mu_{huile} = 1{,}32.10^{-3}\ Pa.s$ à température ambiante et pression atmosphérique.

Détermination de la salinité optimale du système saumure NaCl/SDBS/dodécane

D'une manière générale, les systèmes eau/huile/tensioactif peuvent présenter plusieurs phases. Winsor (Winsor 1948) a défini les relations entre le comportement de phase d'un mélange eau/huile/tensioactif et la nature des différents composés (variables de formulation). Il a ainsi classé les comportements en 3 régimes en fonction de la salinité : Winsor I, II et III. En conditions Winsor I, le tensioactif est dissous principalement dans l'eau, en Winsor II, il se trouve principalement dans l'huile. Dans le cas Winsor III, il existe une zone triphasique où apparaît une microémulsion. La salinité est dite "optimale" car la tension interfaciale entre l'eau, le tensioactif et l'huile présente un minimum.

Ce classement de Winsor est très utilisé en EOR car il permet de déterminer simplement la formulation optimale en préparant des tubes à essais à différentes salinités et en détectant optiquement l'apparition de la phase Winsor III. Pour cette salinité, la tension interfaciale entre l'eau et l'huile est minimale.

Nous avons cherché à observer les différentes phases Winsor de notre système fluide. Pour cela, il est nécessaire de faire varier la salinité des saumures utilisées. D'un point de vue pratique, de l'isobutanol est ajouté à hauteur de 3% en masse afin, d'une part de favoriser la dissolution du SDBS dans l'eau et d'autre part pour favoriser l'apparition de la phase Winsor III (Salager 2000).Une fois les fluides introduits, les tubes sont mélangés et laissés au repos quelques jours afin que la microémulsion soit stabilisée. On peut alors établir un diagramme de salinité comme celui de la Figure 23.

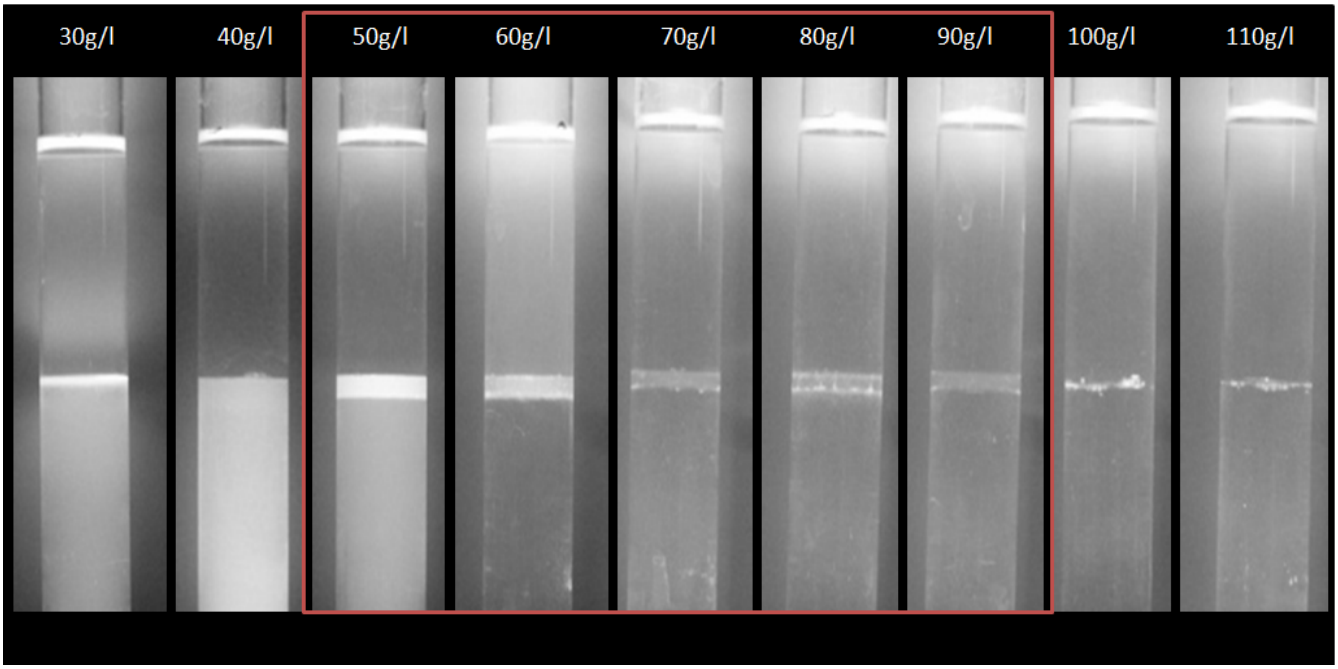


Figure 23 – Diagramme de salinité de la formulation tensioactive, chaque tube à la même composition, seule la concentration en NaCl (en g/L) change.

La gamme de salinité pour laquelle on trouve une émulsion de type Winsor I (tensioactif dans la phase aqueuse) est comprise entre 0 et 40 g/L. La microémulsion de type Winsor III (microémulsion centrale composée d'huile et de tensioactif), signe d'une tension interfaciale très basse, est observée pour une salinité comprise entre 40 et 100 g/L. Lorsque la concentration en NaCl est supérieure à 100 g/L, le tensioactif est majoritairement dans l'huile (système Winsor II).

On peut alors utiliser la méthode de Huh (Huh 1979) pour avoir une estimation de la tension interfaciale à partir des volumes respectifs d'huile et d'eau solubilisés dans la phase intermédiaire pour une concentration en tensioactif donnée, tel que :

$$\gamma_o = \frac{V_o}{V_s} \qquad \gamma_w = \frac{V_w}{V_s} \tag{2.4}$$

Avec, V_o, V_w et V_s représentant respectivement les volumes d'huile, d'eau et de SDBS solubilisés dans la microémulsion.

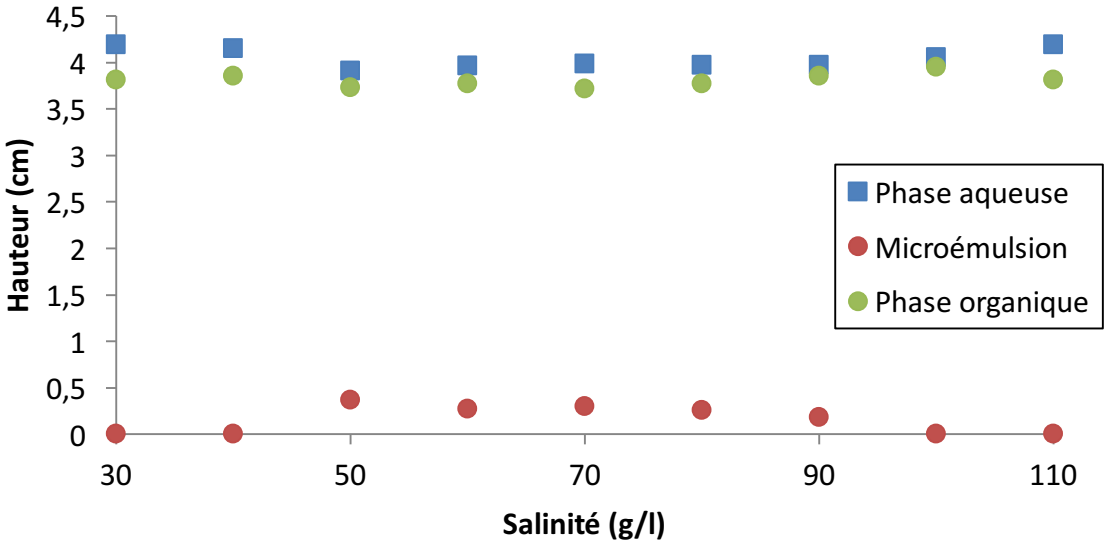


Figure 24 – Evolution de la hauteur de chaque phase en fonction de la salinité

Connaissant les hauteurs de chacune des phases grâce à la Figure 24, on détermine les ratios de solubilisation pour chacune des solutions. On fait ensuite intervenir la relation de Huh, stipulant que :

$$\gamma = \frac{C}{{\sigma_i}^2} \tag{2.5}$$

C étant la constante de Huh, γ la tension interfaciale et σ_i le ratio de solubilisation de la phase i. Le ratio de solubilisation d'une phase i est mesuré en calculant la différence entre le volume de phase i introduit et le volume de phase i mesuré après stabilisation de la microémulsion.

On peut alors tracer l'évolution de la tension interfaciale en fonction de la salinité sur la Figure 25 à partir de la corrélation de Huh (Huh 1979).

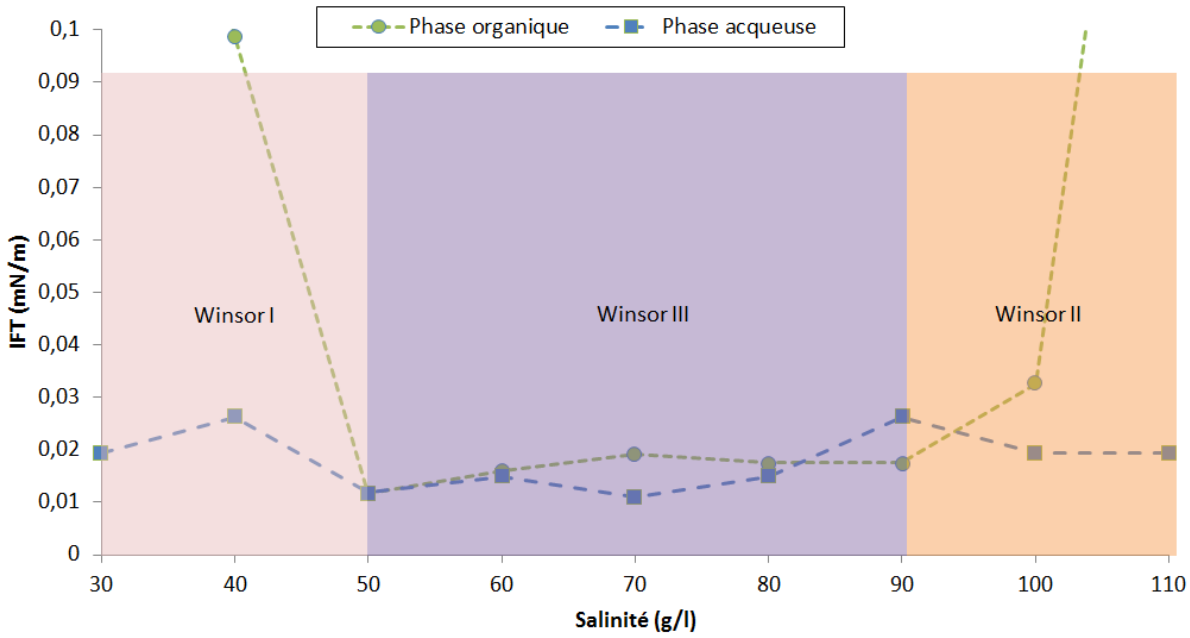


Figure 25 – Evolution de la tension interfaciale de phase aqueuse et de la phase organique avec la microémulsion en fonction de la salinité (méthode de Huh)

La Figure 25 montre l'évolution de l'IFT calculée par la méthode de Huh en fonction de la salinité. Théoriquement, la salinité optimale (tension interfaciale ultra-basse est obtenue lorsque l'IFT entre la microémulsion et la phase aqueuse en excès et l'IFT entre la microémulsion et la phase organique en excès sont égales. Cette méthode reste indicative, il est préférable d'évaluer la salinité optimale au centre de la gamme de Winsor III, ici 70 g/l La tension interfaciale entre le dodécane et la formulation tensioactive à salinité optimale vaut donc environ $0{,}01\ mN/m$.

Pour cette thèse, nous avons choisi de ne pas nous mettre en situation de Winsor III pour travailler avec un système plus simple : un tensioactif dissous dans l'eau en présence d'huile. Ainsi, nous restons en situation diphasique eau/huile avec le tensioactif jouant un rôle d'abaissement de tension interfaciale et non de création d'une nouvelle phase : la microémulsion. De plus la présence du tensioactif dans l'eau sera détectée par une technique de spectrophotométrie. Nous avons choisi de travailler en Winsor I avec une solution aqueuse de 5g/L de NaCl afin d'avoir principalement la solution tensioactive dans la phase eau.

Deux méthodes sont classiquement utilisées pour mesurer les tensions interfaciales :

- Lorsque la tension interfaciale entre les deux fluides est supérieure à 1mN/m, on utilise un tensiomètre à goutte pendante. Cette méthode repose sur la formation d'une goutte d'un fluide 1 dans un fluide 2. En analysant le profil de la goutte, on détermine la valeur de la tension interfaciale (la différence de densité entre les deux fluides étant mesurée préalablement. On détermine grâce à cette méthode la valeur de la tension interfaciale entre le dodécane et la saumure :

$$\gamma_{w/o} = 40\ mN/m$$

- Lorsque la valeur de la tension interfaciale est inférieure à 1mN/m, on utilise un tensiomètre à goutte tournante. Cette méthode repose sur la déformation d'une goutte d'un fluide 1 dans un fluide 2 soumise à une force centrifuge dans un capillaire. La vitesse de rotation est choisie de manière à ce que la longueur de la goutte à l'équilibre soit supérieure à quatre fois son rayon. Une fois l'équilibre atteint, la force centrifuge et celle de surface s'équilibre, il est alors possible d'appliquer la relation suivante : $\gamma = 0.25\Delta\rho\omega^2 r^3$ (avec $\Delta\rho$, la différence de densité entre les deux fluides, ω la vitesse de rotation et r le rayon de la goutte ainsi formé). Le tensiomètre à notre disposition au laboratoire est le Dataphysics SVT20N, on mesure grâce à lui une tension interfaciale entre la formulation tensioactive et le dodécane :

$$\gamma_{SDBS/o} = 0{,}45\ mN/m$$

Malgré l'utilisation d'une formulation tensioactive non optimisée, on note tout de même un abaissement de la tension interfaciale d'un facteur 100

Caractérisation des fluides au spectrophotomètre

Comme nous l'avons précédemment vu, nous souhaitons caractériser les fluides en sortie à l'aide d'un spectrophotomètre en ligne. Pour ce faire, il est nécessaire dans un premier temps d'étudier le spectre d'adsorption des solutions de saumure (NaCl 5g/l + KI 20 mg/l) et de formulation tensioactive (NaCl 5 g/l + SDBS 1 g/l). Ces mesures ont été effectuees à l'aide d'un spectrophotomètre Jasco de laboratoire. On réalise donc un étalonnage de ces solutions

où l'on étudie la valeur de l'absorbance (rapport entre l'intensité du signal lumineux incident sur celui transmis dans une gamme de longueur d'onde comprise entre 200 et 1200 nm). Le spectrophotomètre Jasco en ligne utilisé dans les expériences peut étudier l'évolution au cours du temps de l'absorbance pour 4 longueurs d'ondes. Cette étape est donc primordiale afin de déterminer quelles sont les longueurs d'onde à sélectionner pour étudier la concentration du traceur passif, le KI et du tensioactif, le SDBS.

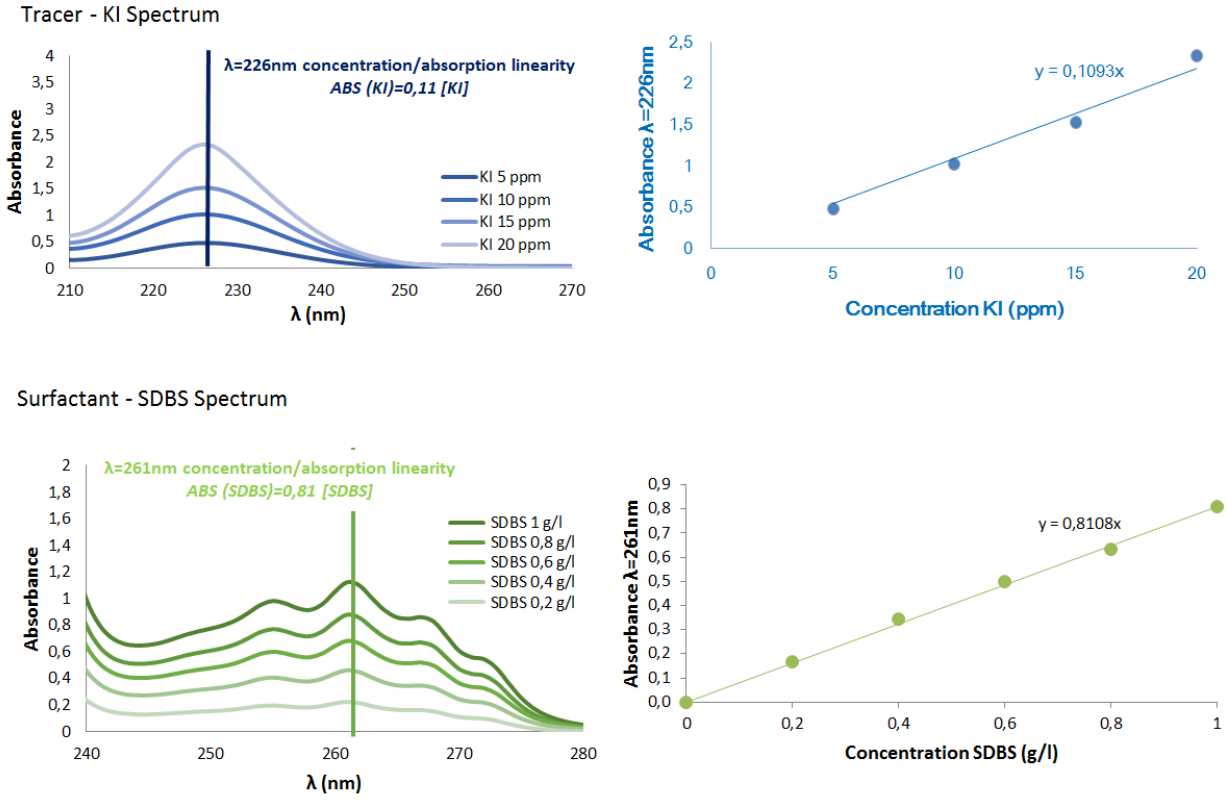


Figure 26 - Spectres des solutions de KI et de SDBS. *Colonne de gauche, les spectres obtenues pour les solutions de KI (1 ppm=1 mg/L) et de SDBS. Sur la colonne de droite, on trace l'évolution de l'absorbance de ces molécules en fonction de leur concentration dans la saumure.*

Dans la Figure 26, on identifie une longueur d'onde de $\lambda_{KI} = 226\,nm$ et de $\lambda_{SDBS} = 261\,nm$ pour lesquelles un signal de l'absorbance est observé pour la plage des concentrations sélectionnées. En traçant ensuite l'évolution de ces valeurs d'absorption mesurées en fonction de la concentration des molécules de KI et de SDBS, on s'aperçoit qu'il s'agit d'une relation linéaire. En sélectionnant ces longueurs d'ondes pour notre étude, nous mesurerons ainsi facilement la valeur de la concentration correspondante en KI et en SDBS dans les fluides en sortie grâce au spectrophotomètre en ligne du montage (Figure 19).

Il est important aussi de noter que le spectre de SDBS recouvre celui du KI pour des longueurs d'onde inférieures à 261 nm, il ne sera donc pas possible d'étudier simultanément le transport du traceur passif et du tensioactif.

2.2.3 Validation de la méthodologie expérimentale : dispersion de Taylor dans un tube capillaire

Avant d'étudier le transport de tensioactif en milieu poreux, nous réalisons une première expérience plus simple nous permettant de valider notre protocole expérimental.

Le milieu poreux est remplacé par un tube capillaire de rayon R=0,8mm et de longueur L=1m. Les débits Q=2 ml/h, Q=5 ml/h et Q=10 ml/h, sont imposés et notre tensioactif est injecté dans le tube à t=0. Le tube est préalablement rempli de la saumure NaCl 5g/l sans tensioactif. On obtient les courbes de percée du tensioactif en sortie du tube capillaire. Notre objectif est double : réaliser une première étude de dispersion de notre tensioactif dans une situation simple (le tube capillaire où nous attendons une dispersion à la taylor) et la validation de notre méthodologie expérimentale de mesure de courbe de percée par spectrophotométrie.

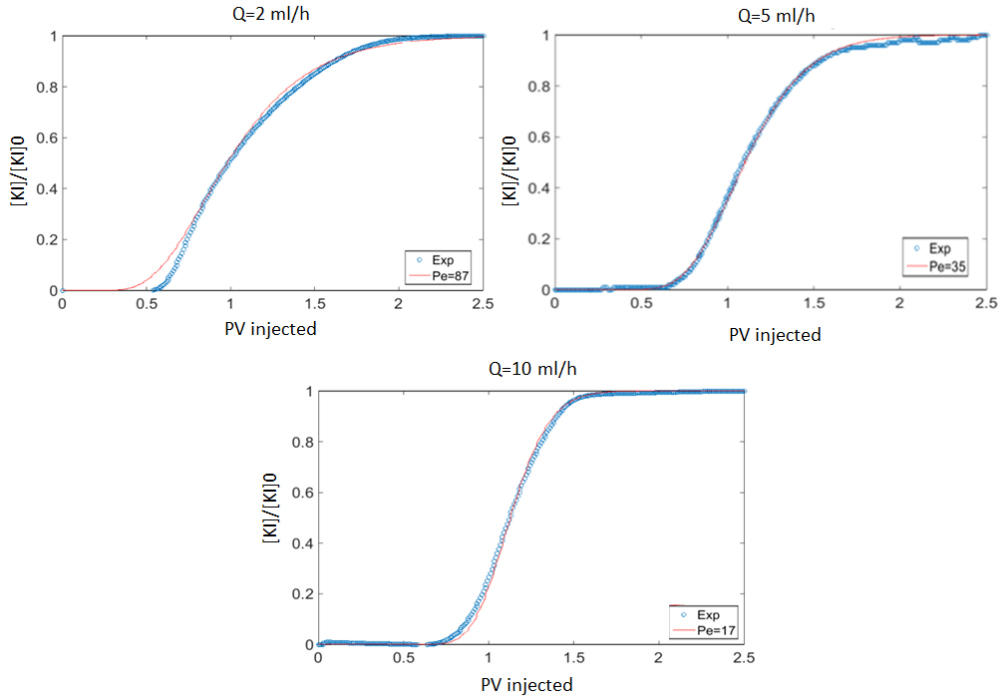


Figure 27 – Courbe de Percée du SDBS pour des débits Q=2 ml/h, $Q = 5\ ml/h$ et Q=10 ml/h. La superposition du modèle et des résultats expérimentaux est optimale pour un Pe=87 lorsque Q=2 ml/h, Pe=35 lorsque Q=5 ml/h et de Pe=17 lorsque Q=10 ml/h

Le résultat analytique reproduisant au mieux l'approche expérimentale pour un débit $Q = 5\ ml/h$ correspond à un nombre de Peclet de 35, on peut alors mesurer la valeur du coefficient de diffusion moléculaire :

$$D_m = 3{,}2.\ 10^{-10}\ m^2/s$$

Résultat cohérent car compris entre 10^{-8} et 10^{-10} dans la littérature (Morelon 1988).

On peut alors tracer le coefficient de dispersion en fonction de la vitesse débitante au carré Figure 28.

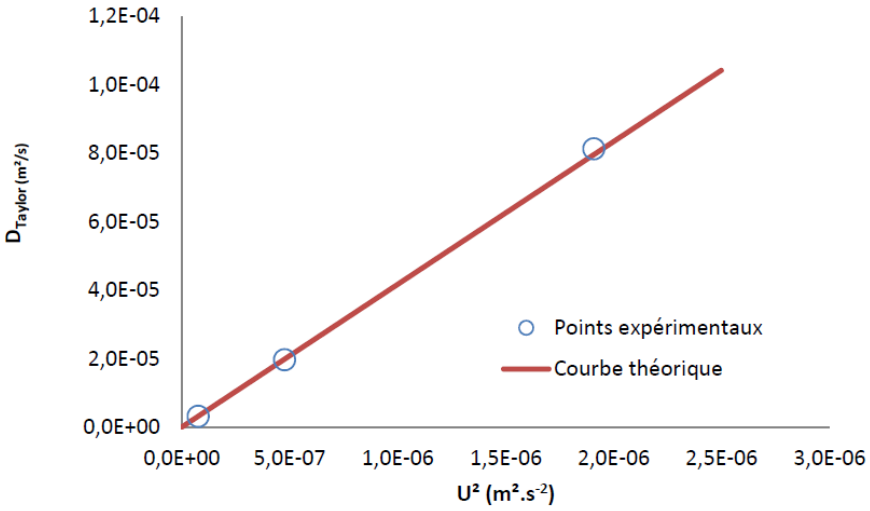


Figure 28 - Coefficient de dispersion de Taylor en fonction de la vitesse de convection

Les points se superposent bien avec la courbe attendue de la dispersion de Taylor pour le coefficient de diffusion moléculaire considéré.

2.2.4 Discussion sur le choix des paramètres expérimentaux

Pour choisir la plage de débit utile pour les expériences, nous avons cherché les vitesses typiques dans un cas de pilote EOR. En effet, comme présenté dans l'introduction et comme nous le préciserons plus loin, un nombre sans dimension important dans le problème des déplacements diphasique en milieu poreux est le nombre capillaire. Nous nous sommes attaché à travailler à des nombres capillaires similaire à ceux typiques du cas réservoir. Nous voulons également conserver le même nombre de Peclet moléculaire $Pe_m = \frac{\alpha U}{D_m}$ pour étudier la dispersion. Dans les deux cas, il faut reproduire au laboratoire une vitesse équivalent à la vitesse d'écoulement en réservoir.

Nous avons donc utilisé les données d'une simulation five-spot (un puits injecteur I et quatre puits producteurs P comme l'indique la Figure 29) représentative d'une injection d'eau dans un réservoir pétrolier. Ces données sont issues de la publication (Douarche 2012). La Figure 29 présente le champ de porosité simulé.

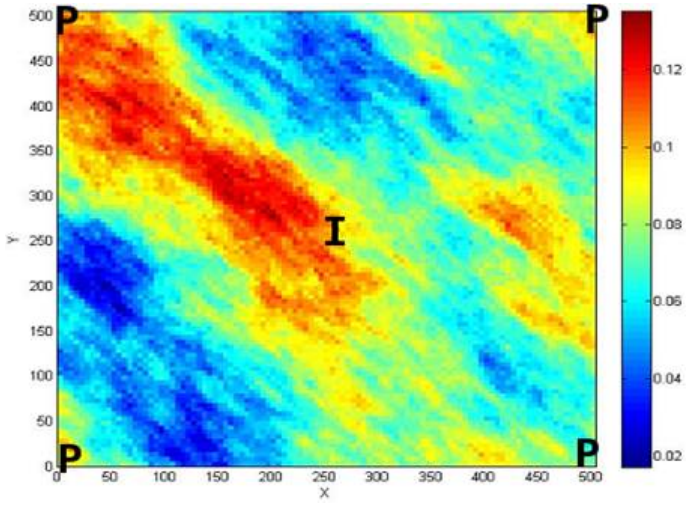


Figure 29 – Hétérogénéité de la porosité dans un champ pétrolifère

Pour la phase de water flood dans cette géométrie, l'histogramme des vitesses est représenté sur la Figure 30.

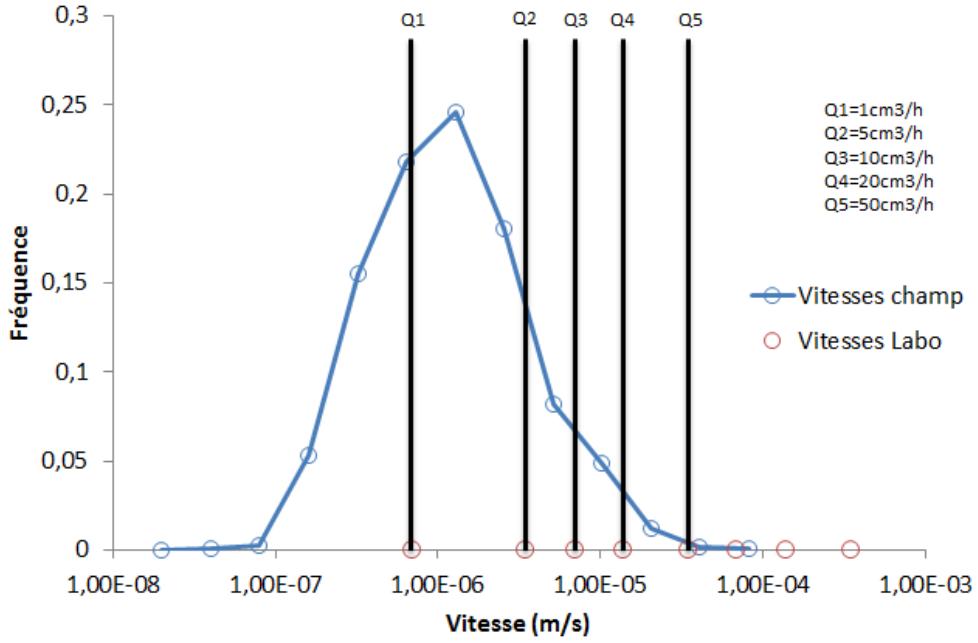
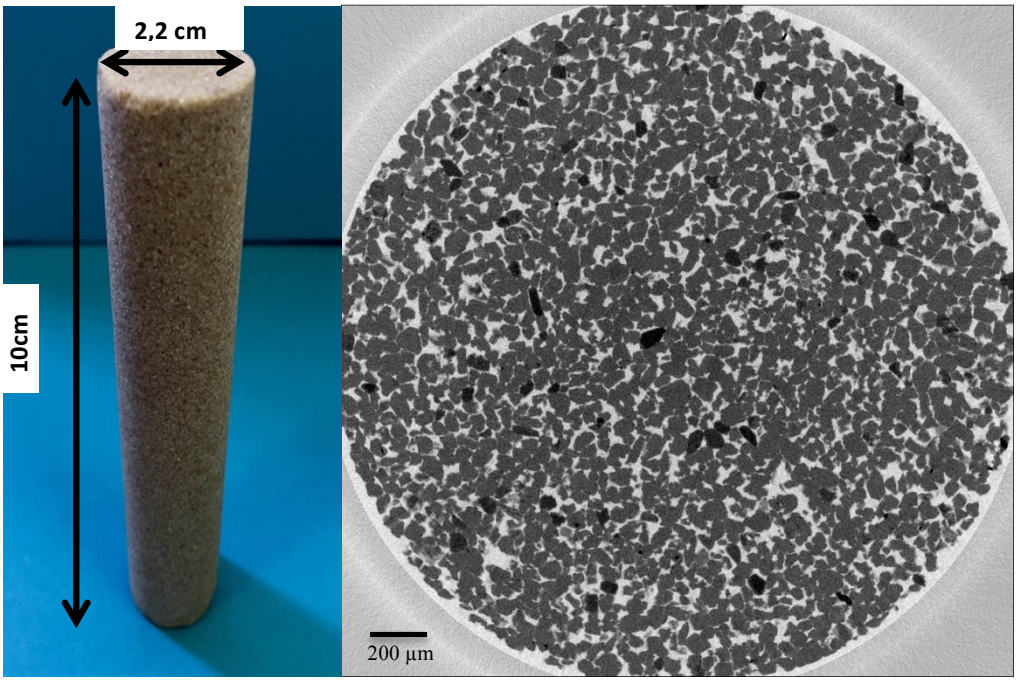


Figure 30 – Histogramme des vitesses au niveau du champ considéré

Au laboratoire, la pompe Pharmacia permet de délivrer un débit compris entre 1 cm^3/h et 500 cm^3/h. Nos échantillons de roche pouvant être introduit dans le dispositif coreflood sont d'un diamètre de 2,3 cm. En comparant les vitesses de champs et les vitesses pouvant être étudier au laboratoire (Figure 30), on s'aperçoit que notre étude de la dispersion

pourra être considérée comme représentative d'un cas applicatif dans une gamme de débit comprise entre 1 cm^3/h et 50 cm^3/h.

2.2.5 Caractéristiques générales des échantillons de roche



(a) (b)

Figure 31 – (a) *Photographie d'un échantillon de roche (mini-plug), (b) Coupe de l'échantillon réalisée par microtomographie.*

Les échantillons sont des carottes cylindriques issues d'un bloc provenant d'un grès de Clashach (Ecosse). Ces grès sont majoritairement composés de quartz (95%), de feldspath potassique (4%) avec une faible proportion d'argiles (1%).

Détermination de la porosité par imbibition d'eau

La porosité ϕ d'un échantillon de roche est caractérisée par le rapport entre le volume d'espace vide en son sein (le volume de pores V_p) et son volume total V_T, tel que :

$$\Phi = \frac{V_P}{V_T} \tag{2.6}$$

Les caractéristiques géométriques (diamètre, longueur) sont déterminées initialement sur l'échantillon sec. La masse de ce même échantillon est déterminée par pesée. L'échantillon est ensuite placé dans un dessiccateur en maintenant le vide (Figure 32).

Figure 32 – Mise sous vide de l'échantillon en dessiccateur

Une fois le vide établi, l'échantillon est saturé avec la saumure dont on connaît la masse m et la masse volumique ρ à sec dans les conditions expérimentales. L'échantillon saturé est alors pesé, sa nouvelle masse est m_s. L'incrément de masse $\Delta m = m_s - m$ après imbibition de la saumure correspond à la quantité de fluide présent dans le volume poreux, on détermine alors $V_P = \frac{\Delta m}{\rho}$.On détermine finalement $\Phi = \frac{\Delta m}{\rho L \pi \left(\frac{D}{2}\right)^2}$. La porosité du grès de Clashach est de 16%, la Figure 36 récapitule les données pétrophysiques fondamentales propres aux échantillons étudiés

Porosimétrie du milieu poreux par injection mercure

A l'aide de l'injection de mercure dans le milieu poreux on peut déterminer la distribution de la taille des seuils de pores. Le mercure est un fluide non mouillant et qui ne dissout pas les surfaces du milieu poreux. Il est nécessaire d'exercer une pression pour le faire pénétrer dans les pores.

L'échantillon est placé dans un pénétromètre en verre comportant un capillaire calibré dont la partie externe est métallisée. Avant d'injecter le mercure, le vide est réalisé dans le pénétromètre, le mercure est ensuite injecté à une pression comprise entre 0,1 et 4000 bar. On

détermine alors en fonction de la pression d'injection du mercure la saturation du milieu en mercure.

Les rayons des pores supposés cylindriques, envahis par le mercure sont calculés par l'équation suivante (loi de Laplace) :

$$r_n = \frac{2\sigma_{Hg} cos\theta}{P_n} \tag{2.7}$$

Où σ_{Hg} étant la tension de surface du mercure, θ l'angle de contact mercure/solide, et P_n la pression d'intrusion du mercure.

La seule inconnue est donc r_n, le rayon de seuil de pore (ou rayon d'accès aux pores). Plus la pression d'injection est grande, plus le rayon de seuil de pore envahi par le mercure est de petite taille. A l'aide de la courbe d'injection de mercure, on obtient la distribution de la taille des seuils de pores présents dans le milieu poreux, reportée en Figure 31.

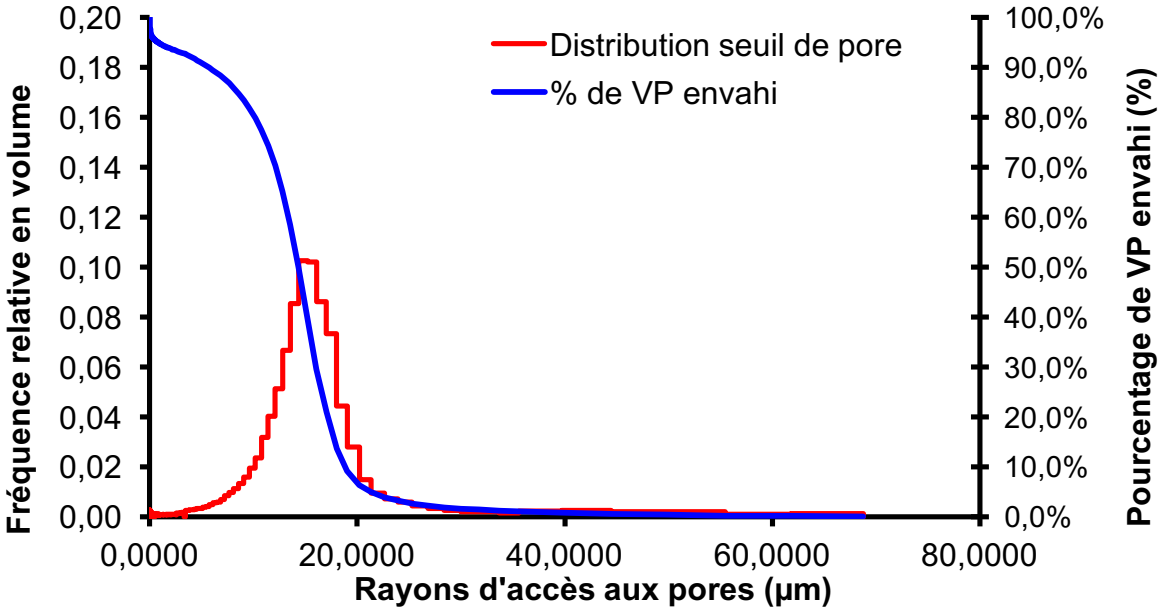


Figure 33 – Distribution de la taille des seuils de pores d'un échantillon de grès de Clashach par porosimétrie mercure

Comme l'indique la Figure 33, la distribution des tailles de seuil pores ainsi obtenue est monomodale, avec un diamètre moyen de 18 µm. Il est à noter que la distance d'accès aux pores peut être assez différente de la taille des pores eux-mêmes.

Mesure de la perméabilité

La perméabilité absolue K d'un échantillon poreux de section S représente sa capacité à laisser s'écouler en son sein un fluide donné. Dans le cadre d'un écoulement laminaire (faible débit Q et faible viscosité μ) et horizontal unidirectionnel, la perméabilité est déterminée expérimentalement à l'aide de l'équation de Darcy.

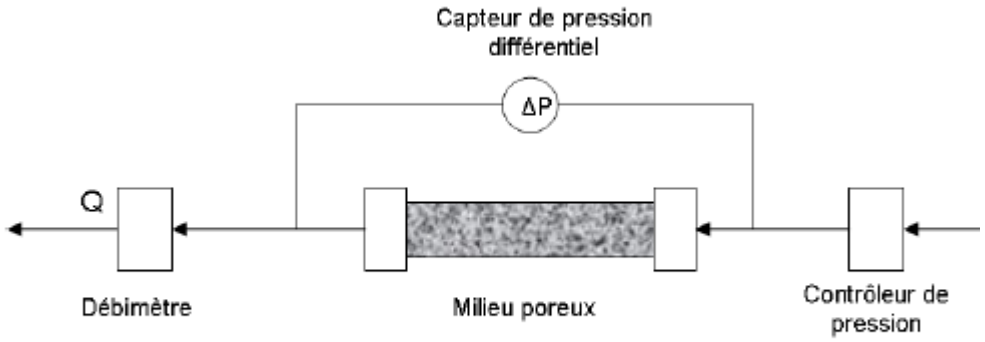


Figure 34 - Dispositif expérimental pour la mesure de la perméabilité

Le montage expérimental est présenté en Figure 34. L'échantillon est placé dans une cellule de type Hassler. L'étanchéité est assurée en imposant une pression de confinement de 30 bar. La mesure de pression (ΔP) est réalisée grâce à un capteur de pression différentiel préalablement étalonné.

Pour un débit d'injection donné, on mesure le différentiel de pression entre l'amont et l'aval de l'échantillon. Plusieurs débits d'injection sont imposés. Pour chacune des expériences, on s'assure que la saturation de l'échantillon est correcte (saturation en eau sous vide pour éviter la présence de bulles) et également que l'étanchéité latérale est bonne. Un exemple de relation débit (Q) en fonction de la pression (P) est présenté sur la Figure 35.

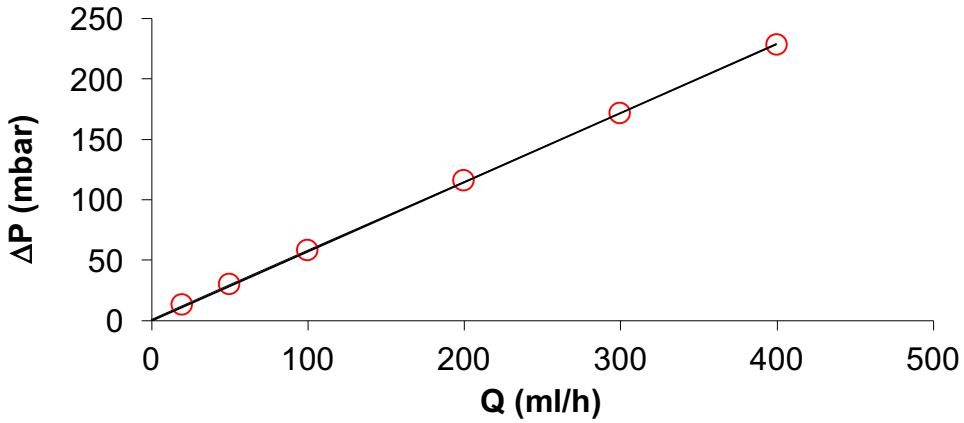


Figure 35 – Relation débit (Q) en fonction de la pression (ΔP) permettant la détermination de la perméabilité d'un échantillon. Le fluide injecté pour mesurer la perméabilité est un mélange d'eau et de NaCl 5g/l de viscosité 1 cP à température ambiante.

Plusieurs échantillons ont été utilisés pour les diverses expériences et on trouve une faible variabilité de porosité ainsi que de perméabilité. Ainsi, la porosité est de l'ordre de 16% et la perméabilité mesurée à la saumure de 1200 mD.

	Dimensions LxD (mm)	**Masse (g)**	**Volume de pore (cm^3)**	**Porosité (%)**	**Perméabilité (mDarcy)**
A	102,2 x 22.6	89.45	6.74 ± 0.1	16.4 ± 0.2	1370 ± 50
B	101.7 x 22.6	89.36	6.48 ± 0.1	15.8 ± 0.2	1160 ± 50
C	99.4x22.7	86.74	6.45 ± 0.1	15.7 ± 0.2	1366 ± 50

Figure 36 –Porosité et perméabilité pour plusieurs échantillons.

Les expériences présentées dans ce chapitre ont été réalisées avec l'échantillon C.

2.3 Etude du transport d'un traceur passif en milieu poreux

2.3.1 Mesure de la dispersivité des échantillons de grès de Clashach

L'échantillon est préalablement saturé avec la saumure NaCl 5 g/l. On réalise préalablement le léchage de la face d'entrée de l'échantillon afin de s'assurer que les cylindres de la pompe ainsi que le tubing compris entre la pompe et l'échantillon soient saturés avec la solution contenant le traceur passif. En effet, la cellule dispose en entrée d'un dispositif de léchage labyrinthique et on introduit dans le dispositif une vanne en sortie de cellule afin de s'assurer que le fluide à injecter ne pénètre pas dans le grès avant le début de l'expérience. A t=0, on injecte la solution contenant la même saumure et le traceur passif (KI 20 mg/L) On trace ainsi la courbe de percée pour un débit constant Q = 20 ml/h. La concentration en traceur est préalablement adimensionnée de telle sorte que pour une absorbance maximale (concentration maximale en KI), la concentration adimensionnée vaut 1 et pour une absorbance nulle, la concentration adimensionnée est nulle. Le traceur puis la saumure sont injectés pendant un temps équivalent à l'injection de 3 fois le volume de pore.

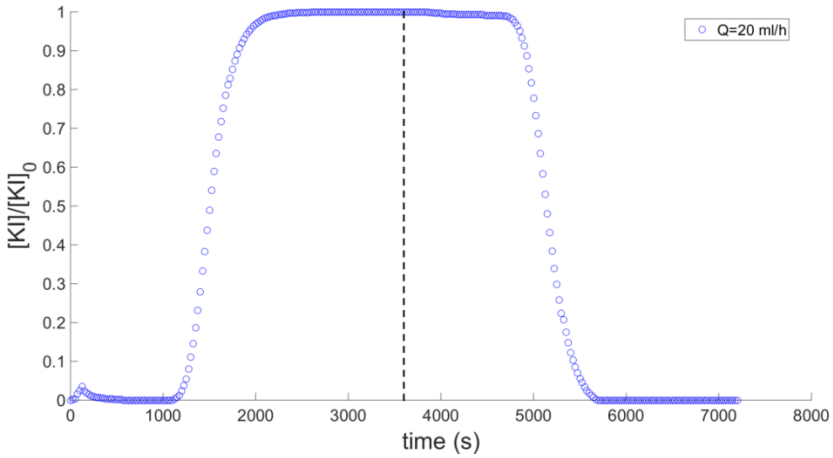


Figure 37 – Evolution de la concentration du KI en fonction du temps pour un débit donné

On introduit la notion de volume de pores injectés tel que $PVinj = \frac{Qt}{V_p}$, on trace alors la courbe de percée en fonction du volume de pores injectés. En prenant bien soin de retrancher les volumes morts, correspondant aux volumes de fluide contenus dans le dispositif entre la sortie de l'échantillon et la cellule du spectrophotomètre. Le volume mort amont a été quant à lui préalablement saturé avec la solution étudiée et est ainsi égal à zéro.

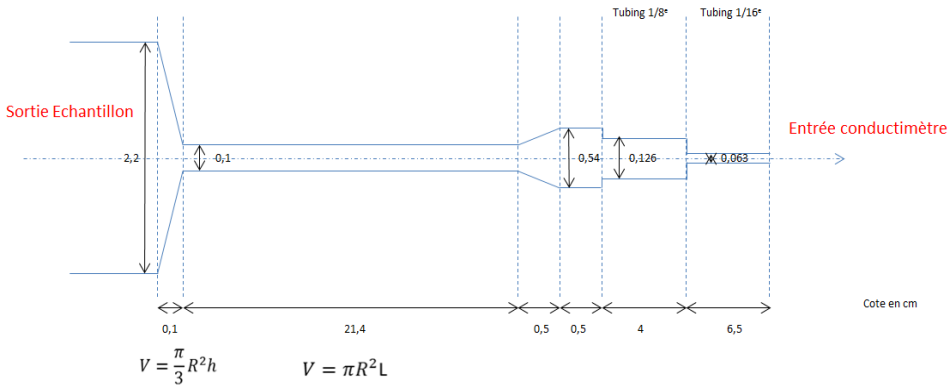


Figure 38 – Schéma du dispositif entre la sortie de l'échantillon et l'entrée du spectrophotomètre

Considérant les caractéristiques du montage présentées en **Erreur ! Nous n'avons pas rouvé la source du renvoi.**, on détermine précisément un volume mort aval égal à 0,53 ml. Le volume poreux de l'échantillon vaut $V_p = 6.45$ mL.

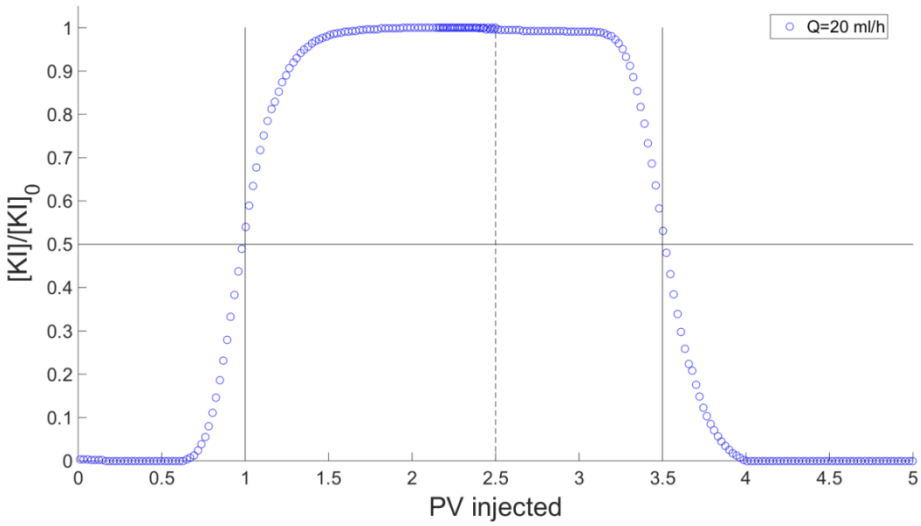


Figure 39 – Evolution de la concentration du KI en sortie de cellule en fonction du volume de pores injectés (temps adimensionné) pour un débit donné (avec prise en compte des volumes morts).

On observe la dispersion du traceur KI dans le milieu poreux, il est important de noter que, lorsqu'un volume de pores est injecté, on obtient une valeur de la concentration adimensionnée de 0,5. De plus la forme de la dispersion est parfaitement symétrique de part et d'autre de la droite horizontale à $[KI]/[KI]_0 = 0{,}5$.

2.3.2 Modélisation du transport d'un traceur dans un milieu poreux

La dispersion est mise en évidence de manière expérimentale en observant au cours du temps l'évolution de la concentration d'un traceur passif. Initialement, le milieu poreux est totalement saturé avec une solution 1, de concentration C1. On injecte à $t = 0$ une solution 2, de concentration C2 (C2>C1), et au cours du temps, on observe la dispersion du front de concentration le long de son parcours au sein du milieu poreux (Figure 40).

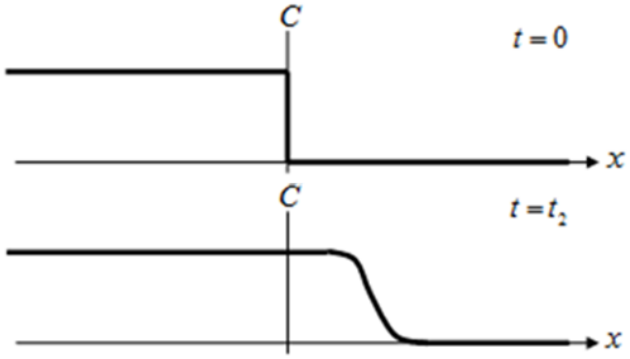


Figure 40 - Evolution de la concentration d'un traceur au cours du temps dans un échantillon

Considérons l'écoulement d'une solution de concentration à vitesse constante U (débit imposé) orienté selon l'axe horizontal à travers un échantillon de section droite d'aire A et de longueur L.

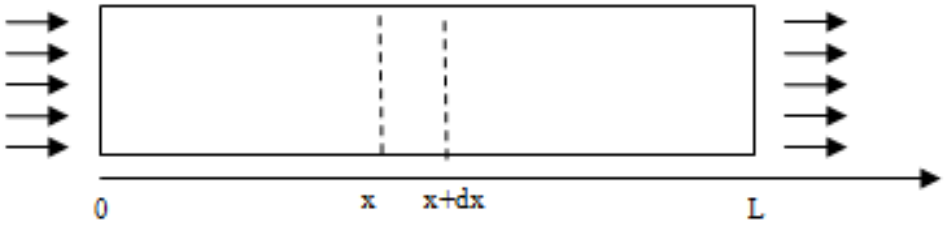


Figure 41- Géométrie et écoulement dans l'échantillon

On distingue au cours du parcours du fluide dans l'échantillon deux types de transports caractérisés par le flux du soluté :

- Le *flux convectif* J_C engendré par l'écoulement est le produit de la concentration du soluté par la projection de la vitesse u du fluide sur le vecteur normal à la surface considérée.

$$J_C = U.C \tag{2.8}$$

- Le *flux dispersif* J_D proportionnel au gradient de concentration caractérise la différence entre le nombre de molécules traversant la paroi en x et en $x + dx$.

$$J_D = -\phi D \frac{\partial C}{\partial x} \tag{2.9}$$

Avec D représentant le coefficient de dispersion tel que $D = D_m + \alpha U$

Ce flux est en général décrit par une loi de type Fick (Wilke 1955) dans un milieu poreux de porosité ϕ, mais il est important de souligner que ce choix reste empirique.

En appliquant la conservation de la masse dans le volume de référence $\Omega = AL$

$$\frac{\partial}{\partial t}\int_{\Omega} \phi C.d\Omega + \int_{A} \left(U.C - \phi D \frac{\partial C}{\partial x}\right) dA = 0 \tag{2.10}$$

Le fluide se déplaçant à vitesse constante, on obtient l'équation de convection diffusion :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{U}{\phi}\frac{\partial C}{\partial x} - D\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} = 0 \tag{2.11}$$

Cette équation s'écrit également en fonction de la vitesse interstitielle $V = \frac{U}{\phi}$

$$\frac{\partial C}{\partial t} + V\frac{\partial C}{\partial x} - D\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} = 0 \tag{2.12}$$

En adimensionnant les grandeurs présentes dans cette équation, on définit :

$$\bar{x} = \frac{x}{L} \qquad \bar{t} = \frac{\bar{V}}{L}t \qquad \bar{C} = \frac{C}{C_0} \tag{2.13}$$

L'équation adimensionnée s'écrit donc :

$$\frac{\partial \bar{C}}{\partial \bar{t}} + \frac{\partial \bar{C}}{\partial \bar{x}} - \frac{D}{\bar{V}L}\frac{\partial^2 \bar{C}}{\partial \bar{x}^2} = 0 \tag{2.14}$$

En introduisant un nouveau *nombre de Peclet* $Pe = \frac{VL}{D}$, permettant de comparer l'influence relative du terme convectif et du terme diffusif, n peut alors écrire *l'équation générale de convection dispersion adimensionnée*.

$$\frac{\partial \bar{C}}{\partial \bar{t}} + \frac{\partial \bar{C}}{\partial \bar{x}} - \frac{1}{Pe}\frac{\partial^2 \bar{C}}{\partial \bar{x}^2} = 0 \qquad (2.15)$$

Ainsi si Pe>>1, le transport de la matière est essentiellement assuré par la convection alors que, si Pe<<1, c'est le phénomène de dispersion qui prédomine.

La quantification de la dispersion passe par la résolution de l'équation (2.15) plusieurs solutions existent et dépendent des conditions imposées. Il s'agit généralement de combinaisons de fonction erreur.

Pour un échelon, les conditions initiales sont : $C(x,0) = C_0$ et $C(0,t) = C_{inj}$

En introduisant la concentration adimensionnée de la forme $\bar{C} = \frac{C - C_0}{C_{inj} - C_0}$ les conditions initiales deviennent $\bar{C}(\mathrm{x},0) = 0$ et $\bar{C}(0,\mathrm{t}) = 1$, la résolution de l'équation de convection diffusion devient celle de Perkins et Johnston dans le cas d'un milieu semi-infini :

$$\bar{C}(\bar{x},\bar{t}) = \frac{1}{2}\left[1 \pm \mathrm{er}f\left(\frac{|\bar{x} - \bar{t}|}{2\sqrt{\frac{\bar{t}}{Pe}}}\right)\right] \qquad (2.16)$$

Cette solution analytique fait appelle à la fonction erf, la fonction d'erreur, elle est définie par :

$$\mathrm{erf}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}}\int_0^x e^{-t^2} dt \qquad (2.17)$$

La comparaison de cette solution analytique avec les mesures expérimentales permet de mesurer le nombre de Peclet qui est le seul paramètre d'ajustement et par conséquent le coefficient de dispersion du milieu poreux.

On réalise à plusieurs débits, 5 ml/h, 10 ml/h, 20 ml/h, 50 ml/h et 100 ml/h l'injection de la solution de traceur d'un volume équivalent à 2 volumes de pores puis la saumure seule

où l'on injecte aussi l'équivalent de 2 volumes de pore. On observera ainsi dans un premier temps la dispersion du traceur dans le milieu poreux préalablement saturé en saumure puis la dispersion de la saumure dans la solution de traceur engendrant une diminution progressive de la concentration en traceur.

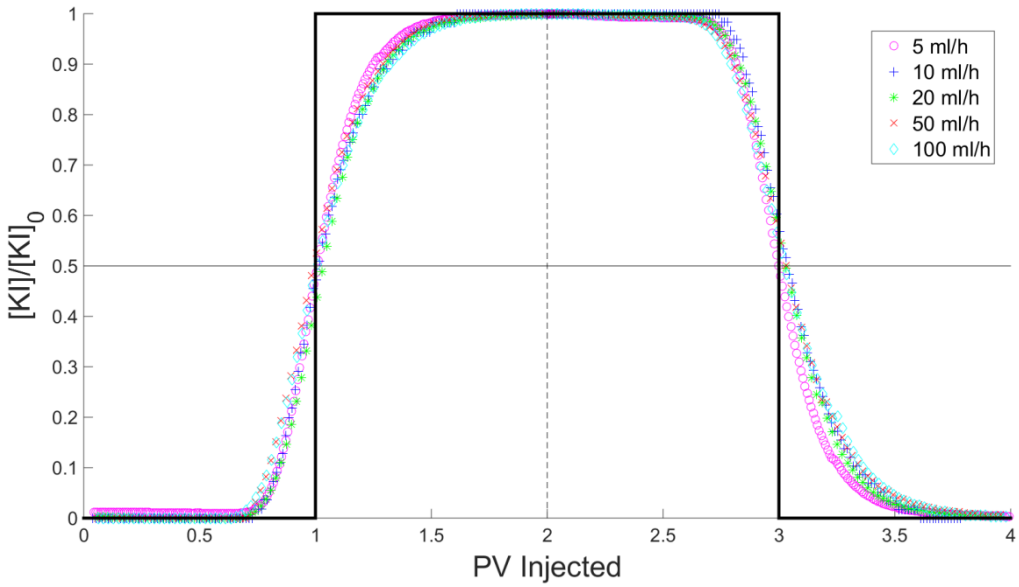


Figure 42 – Courbe de percée à plusieurs débits d'injections du traceur KI en fonction du volume de pore injecté. La courbe noire représente l'évolution de la concentration sans dispersion.

D'après la Figure 42, on observe que, pour tous les débits d'injection les courbes de percées sont superposées dans le repère adimensionné. On observe que la dispersion n'est pas parfaitement symétrique de part et d'autre de $[KI]/[KI]_0 = 0{,}5$, il y a un léger ralentissement du traceur en fin de montée. Dans la littérature, de nombreuses études ont montré (Guillon 2012) que dans un milieu poreux naturel, la dispersion est très souvent « anormale ». En pratique, cela signifie que la solution analytique n'est obtenue que pour des milieux poreux très homogènes. Un milieu naturel, même présentant une faible hétérogénéité en termes de matériaux et de répartition de la porosité, montre souvent une courbe de percée avec une relaxation lente aux temps longs. Le traceur « traîne » dans le milieu. Ce phénomène s'observe dans nos expériences, mais relativement faiblement. Cependant, l'écart de comportement entre le milieu et le modèle s'amplifie au cours du temps.

Afin de prendre en compte les phases d'injection de traceur et d'injection de saumure, la fonction de Perkins et Johnston tracée sur la Figure 43 est la suivante :

- Pour $0 \leq \bar{t} \leq 2 : \bar{C}(\bar{x}=1,\bar{t}) = \frac{1}{2}\left[1 - \mathrm{erf}\left(\frac{|1-\bar{t}|}{2\sqrt{\frac{\bar{t}}{Pe}}}\right)\right]$
- Pour $2 \leq \bar{t} \leq 4 : \bar{C}(\bar{x}=1,\bar{t}) = \frac{1}{2}\left[1 + \mathrm{erf}\left(\frac{|1-\bar{t}|}{2\sqrt{\frac{\bar{t}}{Pe}}}\right)\right]$

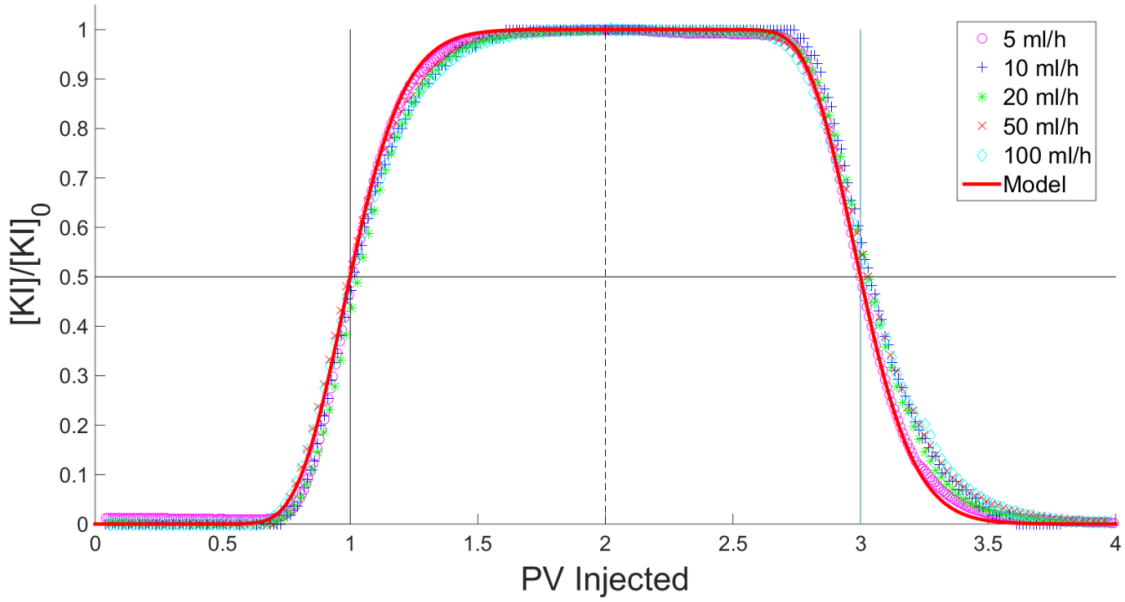


Figure 43 – Concentration normalisée en sortie d'échantillon en fonction du nombre de volumes de pores injectés pour plusieurs débits d'injection. Comparaison entre les expériences et la solution analytique de Perkins et Johnston de l'équation de convection dispersion.

D'après la Figure 43, les courbes de percées (en $\bar{x} = 1$) obtenues expérimentalement se superposent bien avec la solution analytique de Perkins et Johnston pour un nombre de Peclet $Pe = 70$ quel que soit le débit imposé. D'autre part, les courbes de percées étant toute superposées, cela signifie que la dispersion est proportionnelle à la vitesse d'injection, ces résultats sont en accord avec les observations faites par Pfannkuch (1963) (Figure 43)

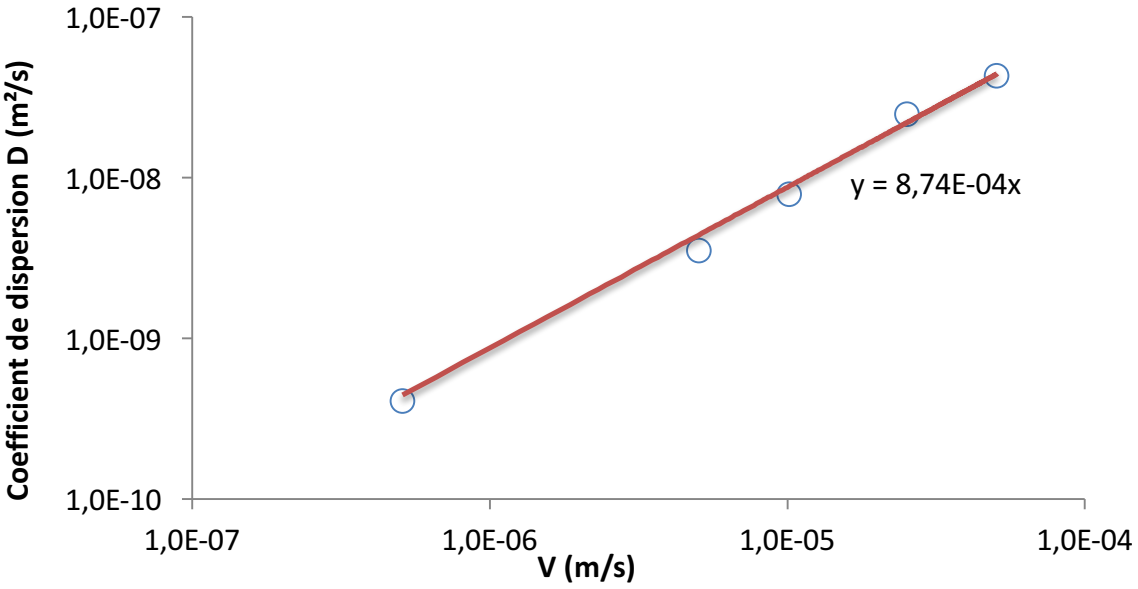


Figure 44 – Mise en évidence de la dispersivité du milieu poreux : coefficient de dispersion en fonction de la vitesse de convection.

Le coefficient de dispersion s'écrit donc $D = \alpha V$, avec α la dispersivité de notre échantillon. On trouve ainsi : $\alpha = 0{,}9\ mm$. Cette longueur peut être interprétée comme étant représentative de l'hétérogénéité du milieu poreux naturel. Elle est à comparer avec la taille de l'échantillon ici de 10 cm. Au cours du transport du traceur, la longueur de la dispersion ne représente qu'environ $1/100^{ème}$ de la longueur totale de l'échantillon. Le grès de Clashach issus de notre bloc est donc relativement homogène. L'expérience a été aussi réalisée sur les échantillons A et B issus du même bloc et les valeurs de dispersivité ainsi mesurées étaient respectivement de 1 mm et de 1,1 mm. Montrant ainsi une bonne reproductibilité des expériences et une faible variabilité des échantillons issus du même bloc.

2.4 Etude du transport du SDBS en milieu poreux

2.4.1 Dispersion du SDBS en milieu poreux

Concernant le SDBS, la même séquence expérimentale que pour le traceur passif est utilisée : l'échantillon, initialement saturé en saumure 5 g/l NaCl est balayé par la solution de SDBS à la concentration de 1 g/l dans une eau 5 g/l NaCl. Un léchage préliminaire de la face d'entrée de la cellule avec la formulation tensioactive a été réalisé afin que le t=0 corresponde à l'injection effective dans l'échantillon.

Quatre débits d'injection ont été investigués (5, 10, 50 et 100 cm^3/h). Pour un débit donné Q1, on injecte 2,5 VP de la solution de tensioactif, puis plusieurs VP de saumure 5 g/l NaCl afin de bien balayer le tensioactif en place. On réinjecte 2,5 VP de solution de tensioactif au débit Q2, etc. L'absorbance est enregistrée en continu grâce au spectrophotomètre placé en sortie du milieu poreux.

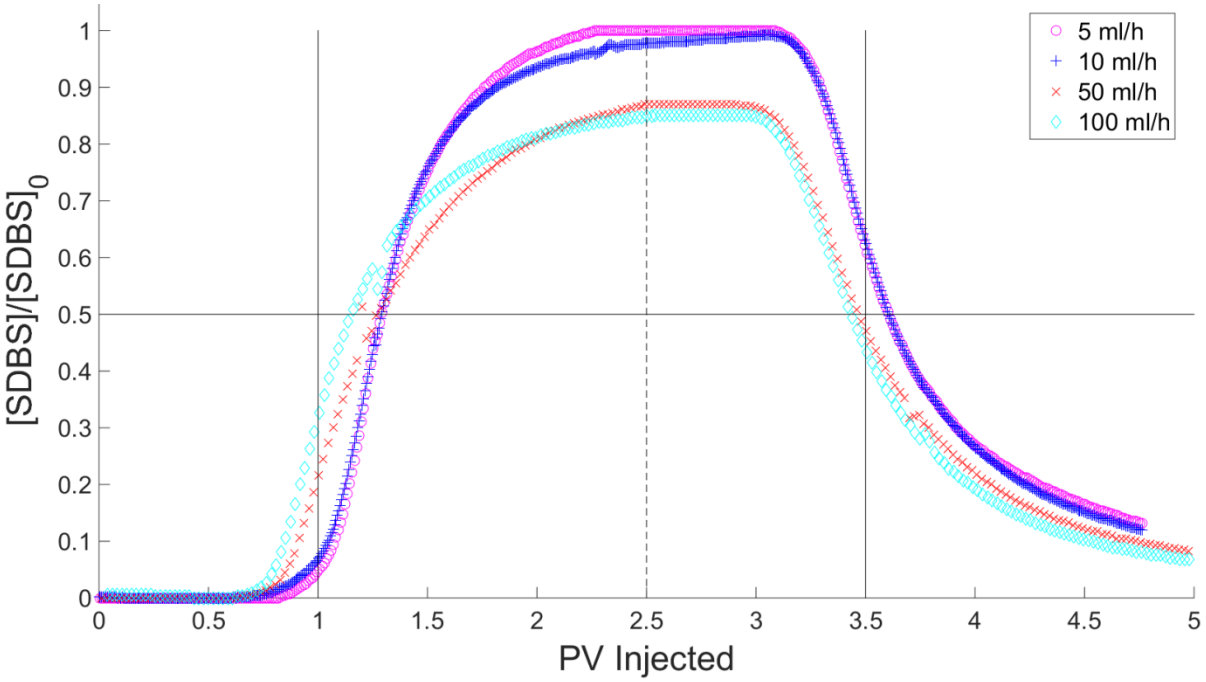


Figure 45 – Courbe de percée pour plusieurs séquences d'injection de SDBS

La courbe de percée en présence de SDBS est très différente de celle du traceur passif. La forme n'est pas symétrique, le maximum de concentration adimensionnée n'est pas atteint dans certains cas et le débit a, de façon évidente une influence, ce qui n'était pas le cas en présence de traceur passif.

A 5 et 10 ml/h, on observe un retard du signal d'absorbance. La première moitié de la courbe de percée est déplacée. Cette observation est une preuve de l'adsorption des molécules de SDBS sur la surface des minéraux du milieu poreux naturel, entrainant ainsi un retard de l'arrivée du surfactant à la sortie de l'échantillon. Pour les débits plus élevés (50 et 100 ml/h), le retard tend à diminuer et le signal du spectrophotomètre n'atteint pas la valeur maximale.

Les courbes de désorption correspondant à l'injection de saumure présentent un aspect très différent. On n'observe aucun retard pour les différents débits, mais le signal décroit très lentement.

2.4.2 Modélisation du transport du SDBS avec le modèle de Langmuir à l'équilibre

En présence d'adsorption, il faut ajouter un terme source dans l'équation de bilan de masse du traceur. L'équation de transport devient alors :

$$\frac{\partial c}{\partial t} + u\frac{\partial c}{\partial x} - D\frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + \frac{1-\phi}{\phi}\frac{\partial \Gamma^*}{\partial t} = 0 \qquad (2.18)$$

Avec Γ^* quantité de surfactant adsorbé (en kg/m^3 de roche) et et ϕ la porosité du milieu poreux.

Pour adimensionner : $c = c_0\bar{c},\ x = L\bar{x}, t = \frac{L}{U}\bar{t}$, $\Gamma^*=c_0\overline{\Gamma^*}$

$$\frac{\partial \bar{c}}{\partial \bar{t}} + \frac{\partial \bar{c}}{\partial \bar{x}} - \frac{1}{Pe}\frac{\partial^2 \bar{c}}{\partial \bar{x}^2} + \frac{1-\phi}{\phi}\frac{\partial \overline{\Gamma^*}}{\partial \bar{t}} = 0 \qquad (2.19)$$

Plusieurs modèles existent pour modéliser le paramètre Γ^*, représentatif de l'adsorption.

Le modèle de Langmuir à l'équilibre permet de prédire la quantité de tensioactif absorbée pour une plage de concentration conséquente (Kwok 1994). En considérant que l'adsorption est un phénomène instantané par rapport au mécanisme de convection, adsorption et concentration en tensioactif sont à l'équilibre. Ces hypothèses étant faites, le modèle de Langmuir à l'équilibre stipule que :

$$\Gamma = \frac{Q^*\lambda c}{1+\lambda c} \qquad (2.20)$$

Avec, Q^* la capacité maximale d'adsorption du milieu poreux et λ une constante d'équilibre.

On peut alors écrire mathématiquement :

$$\frac{\partial \Gamma}{\partial t} = \frac{d\Gamma}{dc}\frac{\partial c}{\partial t} = \frac{Q^*\lambda}{(1+\lambda c)^2}\frac{\partial c}{\partial t} \qquad (2.21)$$

Dans le cas du modèle de Langmuir à l'équilibre on peut donc écrire l'équation de transport des molécules de tensioactifs sous la forme :

$$\left(1+\frac{1-\phi}{\phi}\frac{Q^*\lambda}{(1+\lambda c)^2}\right)\frac{\partial c}{\partial t}+u\frac{\partial c}{\partial x}-D\frac{\partial^2 c}{\partial x^2}=0 \qquad (2.22)$$

Pour adimensionner, on impose : $\overline{Q^*}=\frac{Q^*}{c_0}$; $\bar{\lambda}=c_0\lambda$

Soit l'équation du transport de tensioactif suivante :

$$\left(1+\frac{1-\phi}{\phi}\frac{\overline{Q^*}\bar{\lambda}}{(1+\bar{\lambda}\bar{c})^2}\right)\frac{\partial \bar{c}}{\partial \bar{t}}+\frac{\partial \bar{c}}{\partial \bar{x}}-\frac{1}{Pe}\frac{\partial^2 \bar{c}}{\partial \bar{x}^2}=0 \qquad (2.23)$$

Cette équation de transport de tensioactif avec un modèle de Langmuir isotherme adimensionnée est pratiquement identique à l'équation de convection-diffusion adimensionnée à la différence près qu'elle introduit un terme de retard en facteur de la dérivée temporelle. Ce facteur de retard ne dépend pas de la vitesse de la solution dispersée ; pour un nombre de Peclet donné, la solution n'est pas influencée par le débit d'injection.

On résout numériquement l'équation de transport de tensioactif avec un modèle de Langmuir cinétique à l'aide du solveur Matlab. Le nombre de Peclet de 70 est fixé grâce à l'étude réalisée avec les expériences de traceur passif. Les paramètres $\overline{Q^*}$ et $\bar{\lambda}$ sont ajustés à bas débits pour que le modèle se superpose au mieux aux résultats expérimentaux.

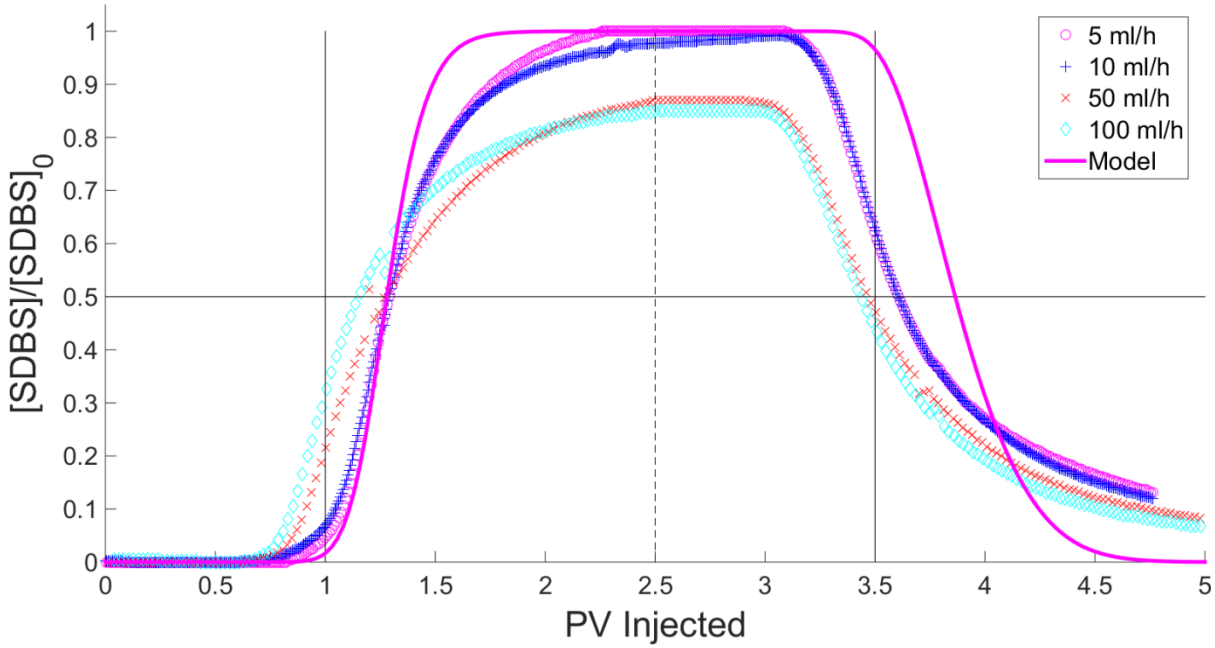


Figure 46 – Comparaison entre le modèle de Langmuir à l'équilibre et les données expérimentales de dispersion de SDBS en milieu poreux pour $Q^* = 0{,}25\ g/l$ et $\lambda = 0{,}45\ l/g$

Le résultat représenté sur la Figure 46 montre bien que le modèle de Langmuir à l'équilibre ne permet pas de reproduire les expériences. Pourtant il s'agit du modèle qui est le plus communément utilisé dans les simulateurs réservoir industriels pour modéliser l'adsorption des tensioactifs.

Cet écart a été mis en évidence par Kwok (Kwok 1994) dans ses travaux de modélisation de l'adsorption d'un tensioactif anionique sur un grès de Berea. Dans ses travaux, l'auteur conclut que les effets cinétiques sont à prendre en compte pour modéliser l'adsorption des tensioactifs.

2.4.3 Modélisation du transport du SDBS avec le modèle de Langmuir cinétique

Le modèle précédent ne tient pas en compte des effets cinétiques de l'adsorption. Adsorption et désorption sont des phénomènes différents et corrélés, le modèle de Langmuir à l'équilibre ne permet pas de modéliser correctement les deux phénomènes comme nous l'avons vu.

D'après Michaels et Morelos, (Michales 1955), l'adsorption d'un tensioactif anionique tel que le SDBS s'effectue via des liaisons hydrogène sur des sites particuliers. Le mécanisme d'adsorption/désorption peut être représenté comme suit :

$$A + S \leftrightarrow A.S \tag{2.24}$$

Avec A la quantité de tensioactif non adsorbé à la surface, telle que A= Q^*-Γ*, S la quantité de tensioactif total à la concentration C et $A.S$ la quantité de tensioactif adsorbé. Ce qui suggère que l'adsorption est un mécanisme réversible. On peut donc écrire que :

$$\frac{d(A.S)}{dt} = k_a.A.S - k_d(A.S) \tag{2.25}$$

Où k_a et k_d représentent respectivement les taux d'adsorption et de désorption.

Le taux de tensioactif adsorbé s'écrit donc (Trogus 1976)

$$\frac{\partial \Gamma^*}{\partial t} = k_a c(Q^* - \Gamma^*) - k_d \Gamma^* \tag{2.26}$$

Notons qu'à l'équilibre, par définition $\frac{\partial \Gamma^*}{\partial t} = 0$, on obtient bien $\lambda = \frac{k_a}{k_d} = \frac{\Gamma^*}{c(Q^* - \Gamma^*)}$

Soit l'équation de Langmuir à l'équilibre vue précédemment.

Dans le cas du modèle de Langmuir cinétique, l'équation de transport des molécules de tensioactifs s'écrit donc :

$$\frac{\partial c}{\partial t} + u\frac{\partial c}{\partial x} - D\frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + \frac{1-\phi}{\phi}(k_a c(Q^* - \Gamma^*) - k_d \Gamma^*) = 0 \tag{2.27}$$

En adimensionnant, on obtient :

$\frac{L}{U} c_0 \frac{\partial \overline{\overline{\Gamma^*}}}{\partial \bar{t}} = c_0 k_a \bar{c}\left(Q^* - c_0 \overline{\overline{\Gamma^*}}\right) - k_d c_0 \overline{\overline{\Gamma^*}}$ Soit $[k_a Q^*] = [k_a c_0] = [k_d] = \left[\frac{U}{L}\right]$

L'équation de transport de tensioactif s'écrit donc, dans ce cas :

$$\frac{\partial \bar{c}}{\partial \bar{t}} + \frac{\partial \bar{c}}{\partial \bar{x}} - \frac{1}{Pe}\frac{\partial^2 \bar{c}}{\partial \bar{x}^2} + \frac{1-\phi}{\phi}\frac{L}{U}(k_a \bar{c}(Q^* - C_0\overline{\Gamma^*}) - k_d\overline{\Gamma^*}) = 0 \tag{2.28}$$

En fixant les paramètres d'adimensionnement suivants :

$$\overline{k_a} = C_0 \frac{L}{U} k_a \qquad \overline{k_d} = \frac{L}{U} k_d \qquad \overline{Q^*} = C_0 Q^*$$

Le modèle d'adsorption de Langmuir cinétique s'écrit :

$$\frac{\partial \bar{c}}{\partial \bar{t}} + \frac{\partial \bar{c}}{\partial \bar{x}} - \frac{1}{Pe} \frac{\partial^2 \bar{c}}{\partial \bar{x}^2} + \frac{1-\phi}{\phi} \left(\overline{k_a} \bar{c} (\overline{Q^*} - \overline{\Gamma^*}) - \overline{k_d} \overline{\Gamma^*} \right) = 0 \tag{2.29}$$

De nouveau, on résout numériquement l'équation de transport de tensioactif avec le modèle de Langmuir cinétique (2.29) en fixant le nombre de Peclet à 70, basé sur les expériences en traceur passif. Le paramètre $Q^* = 0{,}25\ g/l$, est fixé à l'aide du modèle à l'équilibre, justifiant ainsi une étape préalable d'utilisation de ce modèle à bas débit afin de déterminer la capacité d'adsorption de la roche.

Les deux termes k_a et k_d sont constants. Le seul paramètre à modifier est le débit. On ajuste donc au mieux les paramètres du modèle de Langmuir cinétique pour superposer le modèle et l'expérience.

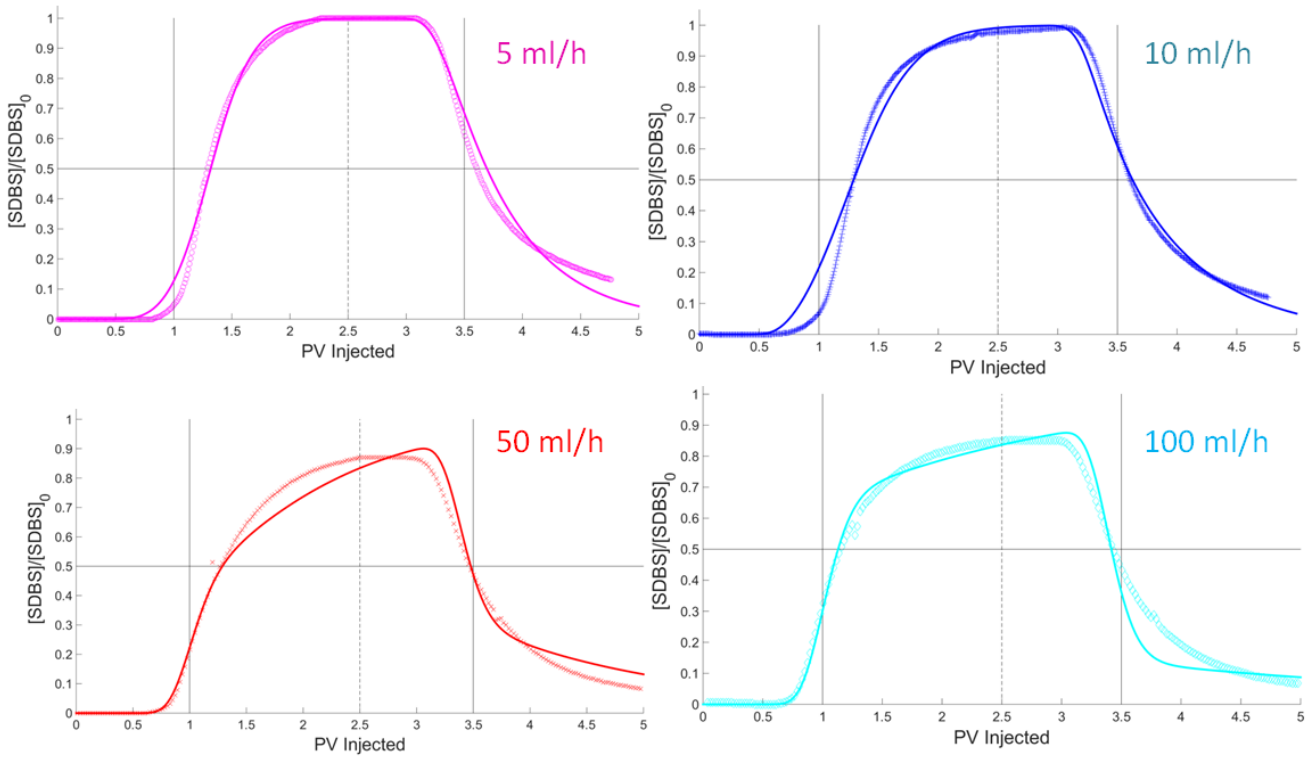


Figure 47 – Courbes de percées du SDBS pour différent débits. Comparaison entre les expériences et le modèle de Langmuir cinétique

Le modèle de Langmuir cinétique pour modéliser l'adsorption permet une bonne représentation des données expérimentales. Le modèle permet d'expliquer et de reproduire les différences entre les phénomènes d'adsorption et de désorption (respectivement partie montante et descendante des courbes de percées) et en particulier, le modèle reproduit bien le fait que la concentration en sortie n'atteint pas sa valeur maximale pour les débits les plus élevés (50 et 100 ml/h).

Les deux taux d'adsorption et de désorption du modèle de Langmuir cinétique pour un ajustement optimal valent : $k_a = 2{,}2.10^{-4} m^3.kg^{-1}.s^{-1}$ et $k_d = 2{,}6.10^{-4} s^{-1}$.

$c_0 = 1 kg.m^{-3}$, la concentration en SDBS et $t_a = \frac{1}{c_0 k_a}$ est l'échelle de temps représentative de l'adsorption cinétique.

Nos mesures montrent que $t_a = 4550 s$.

En divisant t_a par le temps nécessaire pour injecter 1 VP de solution dans l'échantillon, le ratio vaut 1 lorsque le débit est de 5ml/h et de 0,05 pour un débit de 100ml/h.

Aux faibles débits d'injection, l'échelle de temps de l'adsorption est donc du même ordre de grandeur que le temps de convection, la courbe de percée est donc la plus proche du modèle de Langmuir à l'équilibre mais pour un débit élevé, la cinétique de l'adsorption est bien plus importante que celle de la convection.

Ce qu'il faut retenir…

Les échantillons sélectionnés pour les expériences sont des grès de Clashach issus du même bloc. Il existe une faible variabilité des paramètres pétrophysiques entre eux : perméabilité moyenne $K = 1200\ mD$ et une porosité moyenne $\phi = 16\%$.

- Les fluides utilisés sont :
  - Saumure : NaCl 5 g/l, viscosité $\mu_w = 1cP$
  - Traceur passif : NaCl 5 g/l + KI 20 mg/l, viscosité $\mu_w = 1cP$
  - Formulation tensioactive : NaCl 5 g/l + SDBS 1 g/l, viscosité $\mu_{SDBS} = 1cP$
  - Huile : dodécane, viscosité $\mu_o = 1{,}34\ cP$, valeur des tension interfaciale $\gamma_{w/o} = 40\ mN/m$ et $\gamma_{SDBS/o} = 0{,}45\ mN/m$
- Le montage est un coreflood avec une analyse des fluides en sortie par spectrophotomètrie
- A travers l'étude du transport du traceur passif on met mise en évidence de la dispersion et on mesure la dispersivité du milieu poreux
- Lors de l'étude du transport du tensioactif, on observe deux phénomènes, la dispersion et l'adsorption de ce dernier. La modèlisation classique avec un modèle de Langmuir à l'équilibre n'est pas suffisante pour décrire le transport du tensioactif. Il existe une véritable cinétique de l'adsorption. A l'aide du modèle de Langmuir cinétique, on traduit beaucoup mieux la dynamique du transport d'un tensioactif.

Dans le chapitre suivant…

Nous étudierons de la même manière le transport du tensioactif mais dans un milieu poreux à saturation en huile résiduelle à des débits ou il n'y a pas de mobilisation de l'huile.

Chapitre 3 – Transport d'un tensioactif en milieu poreux naturel à saturation en huile résiduelle

Dans ce chapitre, nous allons nous intéresser aux déplacements eau/huile en milieu poreux, en présence de tensioactifs. Le chapitre précédent nous a renseigné sur le transport de tensioactif en condition monophasique et nous avons mis en évidence à la fois le phénomène de dispersion et les mécanismes d'adsorption/désorption contrôlant le transport de tensioactifs. Nous nous intéressons dans ce chapitre et le suivant à l'interaction entre le tensioactif et l'huile présente dans le milieu poreux.

Dans un premier temps, nous étudierons le déplacement diphasique simple eau/huile sans tensioactif, ce qui nous permettra de retrouver la notion de perméabilité relative permettant de décrire la mobilité de l'huile lors de l'injection d'eau. Nous pourrons également définir le point de saturation résiduelle en huile, ce point donne la limite basse de récupération d'huile lors d'une injection d'eau.

Nous verrons que cette saturation résiduelle en huile dépend en fait du nombre capillaire et que, au-delà d'un nombre capillaire critique, l'huile peut à nouveau être produite.

La fin de ce chapitre 3 est consacrée à nouveau à l'étude de l'injection de tensioactif dans un milieu poreux à saturation résiduelle, mais nous nous placerons dans des conditions d'écoulement telles que le nombre capillaire soit toujours inférieur au nombre capillaire critique. Ainsi, dans ce chapitre, l'huile est toujours immobile dans la structure poreuse.

3.1 Déplacement eau/huile en milieux poreux sans tensioactif

La récupération secondaire dans un réservoir pétrolier consiste le plus souvent en une injection d'eau dans des puits dits injecteurs afin de balayer l'huile mobile en place. Cette huile sera récupérée au niveau des puits producteurs. Comme nous l'avons vu dans le premier chapitre, l'équation régissant le transport de l'huile et de l'eau est l'équation de Darcy généralisée pour les conditions diphasiques. Les paramètres nécessaires pour décrire la récupération de l'huile, sont les perméabilités relatives à l'eau et à l'huile dépendantes uniquement de la saturation en huile du milieu :

Figure 48 : Schéma de la séquence d'injection d'eau

Dans le cas simple à une dimension représenté sur la Figure 48, les équations de transport sont les suivantes :

$$\frac{Q_w}{A} = \frac{K_0 k_r^w(S_w)}{\eta_w}\frac{\partial P_w}{\partial x} \qquad \frac{Q_o}{A} = \frac{K_0 k_r^o(S_w)}{\eta_o}\frac{\partial P_o}{\partial x} \tag{3.1}$$

Avec kr_w et kr_o les perméabilités relatives à l'eau et à l'huile respectivement.

La pression capillaire est définie comme la différence de pression entre l'eau et l'huile considérée comme deux phases continues remplissant le volume poreux et fonction de la saturation. Dans les hypothèses des équations de Darcy généralisées, il est nécessaire d'avoir les phases continues afin que les gradients de pression puissent transmettre un flux global.

En dérivant par rapport à la variable d'espace la pression capillaire : $\frac{\partial P_o}{\partial x} = \frac{\partial P_w}{\partial x} + \frac{\partial P_c}{\partial x}$

On obtient : $\frac{Q_o}{A} = \frac{Q_w}{A}\frac{k_r^o}{k_r^w}\frac{\eta_w}{\eta_o} + \frac{K_0 k_r^o}{\eta_o}\frac{\partial P_o}{\partial S}\frac{\partial S}{\partial x}$

Dans le cas d'un gisement, on peut faire l'hypothèse que les tailles typiques sont grandes (typiquement la dizaine de mètre) ce qui conduit à négliger le gradient de pression capillaire à ces échelles. Ainsi, le débit d'huile produit s'exprime très simplement comme le rapport des perméabilités relatives et du rapport des viscosités :

$$\frac{Q_o}{A} = \frac{Q_w}{A}\frac{k_r^o}{k_r^w}\frac{\eta_w}{\eta_o} \tag{3.2}$$

La détermination au laboratoire des perméabilités relatives permet donc de prévoir les débits d'huile. Nous avons étudié, dans un premier temps, la forme des perméabilités relatives en imbibition pour notre roche et le couple de fluide que nous avons choisi.

3.2 Mesure expérimentale des perméabilités relatives eau/huile en milieu poreux naturel en conditions d'imbibition

Il existe une littérature abondante sur la mesure des perméabilités relatives et leurs propriétés. On peut se reporter au livre de Hornarpour, (Hornarpour 1986) et plus récemment Sahimi, (Sahimi 2011). Plusieurs méthodes de mesure de perméabilité relatives ont été développées à IFPEN (R. E. Lenormand 1995), en utilisant un montage permettant de mesure à la fois les débits et la pression ainsi que les profils de saturation in situ : un montage MSD (Méthode Semi Dynamique). Il s'agit d'un coreflood avec des échantillons cylindriques d'une quinzaine de centimètres de longueur avec un diamètre supérieur à 2cm. La particularité de ce montage est la présence d'un émetteur et récepteur à rayon X qui se déplace le long de l'échantillon permettant d'effectuer une mesure d'absorption des rayons X au cours du temps, et de tracer le profil de saturation. La détermination des courbes de perméabilité relatives est relativement longue (environ un mois d'expérience dû à la taille de l'échantillon).

Afin de raccourcir ces temps d'expériences, un nouvel équipement appelé CAL-X a été développé récemment dans le département « Géofluides et roches » d'IFPEN. Il permet de travailler sur des échantillons de faibles dimensions avec une grande précision de mesures grâce à la radiographie à rayon X.

Figure 49 – Photographie de la cabine CAL-X

Les échantillons placés dans la cellule sont cylindriques, de longueur 2cm et de diamètre 1cm. Le dispositif est installé dans une cabine à Rayons-X permettant d'effectuer des radiographies de grande résolution en temps réel (une image chaque seconde).
Nous avons mis en œuvre pour nos mesures de perméabilité relatives la méthode : *steady-state.* Les deux phases huile et saumures ont co-injectées dans la cellule contenant l'échantillon préalablement saturé en saumure NaCl 5g/l avec un débit d'huile Q_o et un débit d'eau Q_w constant dans le temps. L'expérience consiste, pour chaque valeur de débit, à attendre l'établissement du régime permanent (plus de variation de saturation et de pression).

En écrivant les équations de Darcy généralisées dans ces conditions, on peut aisément calculer les perméabilités relatives :

$$\frac{Q_w}{A} = \frac{K k_{rw}(S_w)}{\mu_w}\frac{\Delta \mathrm{P}_w}{L} \qquad \frac{Q_o}{A} = \frac{K k_{ro}(S_w)}{\mu_o}\frac{\Delta P_o}{L} \qquad (3.3)$$

On néglige dans un premier temps la pression capillaire (soit $P_c = 0$; $\Delta \mathrm{P}_w = \Delta P_o = \Delta \mathrm{P}$). On, peut donc réécrire les équations précédentes sous la forme :

$$k_{rw}(S_w) = \frac{Q_w}{A}\frac{\mu_w}{K}\frac{L}{\Delta P} \qquad k_{ro}(S_w) = \frac{Q_o}{A}\frac{\mu_o}{K}\frac{L}{\Delta P} \qquad (3.4)$$

Les débits sont des paramètres contrôlés et donc connus, μ_w et μ_o respectivement les viscosités de l'eau et du dodécane sont connues. La perméabilité absolue K est préalablement déterminée, la surface A et la longueur L de l'échantillon sont fixées. La différence de pression entre l'amont et l'aval de la cellule ΔP est mesurée grâce à un capteur de pression différentiel. Les perméabilités s'obtiennent donc directement à partir des mesures réalisées en régime permanent.

Une deuxième hypothèse sous-jacente pour calculer les perméabilités relatives est de considérer que la saturation en huile est uniforme sur toute la longueur de l'échantillon. Sinon une dépendance selon x serait à prendre en compte pour la saturation et on perd alors l'expression analytique des perméabilités relatives. Grâce au dispositif CAL-X, on mesure la saturation en huile le long de l'échantillon et on vérifie qu'en imbibition le profil de saturation est quasi homogène le long de l'échantillon.

L'expérience d'imbibition selon le protocole d'injection des fluides est représentée sur la Figure 50.

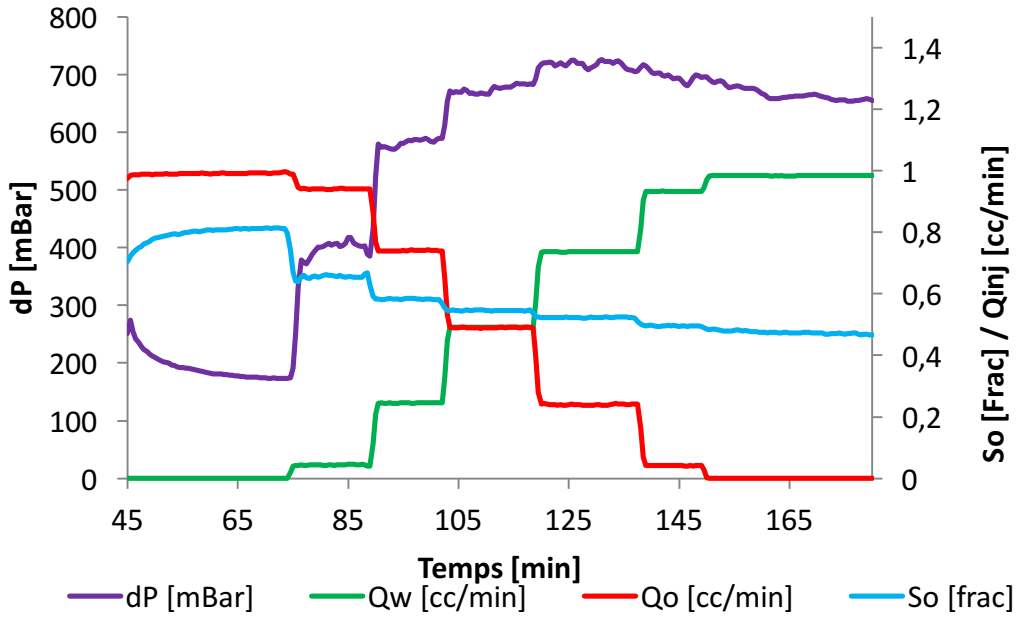


Figure 50 – Evolution de la pression et de la saturation en huile en fonction des débits d'eau et d'huile pendant la phase d'imbibition

L'expérience d'imbibition commence à t=74min. On augmente progressivement le débit d'eau en diminuant le débit d'huile de tel sorte que $Q_w + Q_o = 1ml/min$ tout au long de l'expérience. A chaque nouveau palier de débit, on attend que la pression et la saturation moyenne s'équilibrent. A chaque étape on retient les valeurs de saturation en huile, les débits et les différences de pression. On trace alors les courbes de perméabilités relatives en huile et en eau telles que présentées sur la Figure 51.

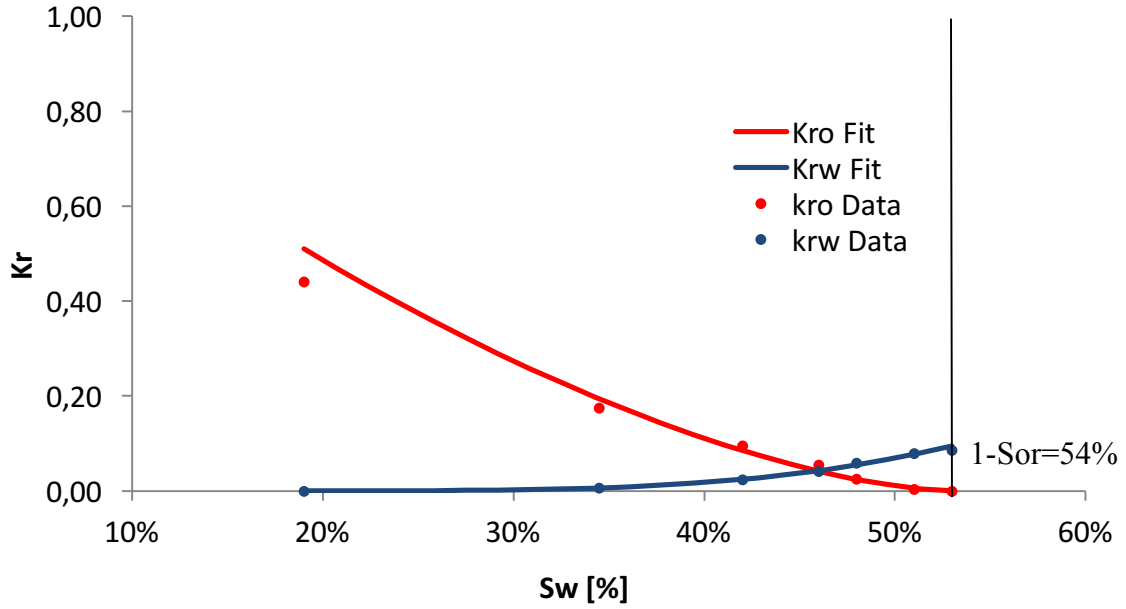


Figure 51 – Courbes de perméabilité relative de l'huile et de l'eau pour un grès de Clashach

On utilise un paramétrage des courbes de perméabilités relatives couramment utilisée par les ingénieurs réservoir, il s'agit des équations de Brooks-Corey (Brooks 1966) n1 et n2 tel que :

$$k_{rw} = K^{w}_{max}(Sw)^{n1} \qquad k_{ro} = K^{o}_{max}(1 - Sw)^{n2} \qquad (3.5)$$

En fixant $n1 = 3{,}44$ et $n2 = 1{,}59$ on obtient un bon calage des points de mesures expérimentaux.

Comme nous l'observons sur les courbes de perméabilités relatives, la perméabilité relative à l'huile devient nulle lorsque la saturation en huile atteint la valeur de 47% dans l'expérience CAL-X présentée. Le débit d'huile est alors nul quel que soit le gradient de pression d'eau d'après le couple d'équation (3.5).

Cette valeur correspondant à une valeur de la perméabilité relative nulle est très importante en pétrophysique et est appelé Saturation Résiduelle en huile : Sor. L'huile est alors considérée comme immobile et ne peut être récupérée lors de balayages à l'eau dans la gamme de débit d'injection pour récupération de l'huile sur champ.

3.3 Nombre capillaire critique de dépiégeage et courbes de désaturation capillaires

3.3.1 Nombre capillaire critique de dépiégeage

Rappel sur les hypothèses de validité des modèles de perméabilités relatives en milieu poreux

Dans l'approche de Darcy généralisé permettant de décrire les écoulements diphasiques non miscibles eau/huile, plusieurs hypothèses sous-jacentes doivent être remplies pour avoir une bonne application de ce formalisme. Tout d'abord, on se place dans l'hypothèse des écoulements laminaires à bas nombre de Reynolds ce qui justifie la linéarité entre les flux et les gradients de pression (dans l'expérience ci-dessus, le nombre de Reynolds est de l'ordre de 10^{-3}). La seconde hypothèse est que les contraintes visqueuses sont négligeables devant la pression de Laplace engendrées par les courbures d'interfaces (les forces visqueuses sont petites face aux forces capillaires). Ainsi, on peut faire l'hypothèse que les perméabilités relatives ne dépendent que de la saturation locale et pas des vitesses relatives des phases.

Nous verrons qu'en pratique, il faut que le nombre capillaire soit inférieur à 10^{-4} pour une roche de type roche réservoir. Dans l'expérience réalisé, le nombre capillaire est de 5.10^{-6}

Capillaire critique de dépiégeage

Lorsque la saturation en huile résiduelle est atteinte : Sor, l'huile devient totalement déconnectée dans le milieu poreux. Ceci a bien été montré par différents auteurs en utilisant des techniques de visualisation des phases (Oughanem 2013), (Datta 2013).

Nous reproduisons ici quelques observations de l'organisation des phases lorsque le Sor est atteint mesuré par tomographie à rayon X. Le Sor est atteint par balayage à l'eau par palier de débits successifs.

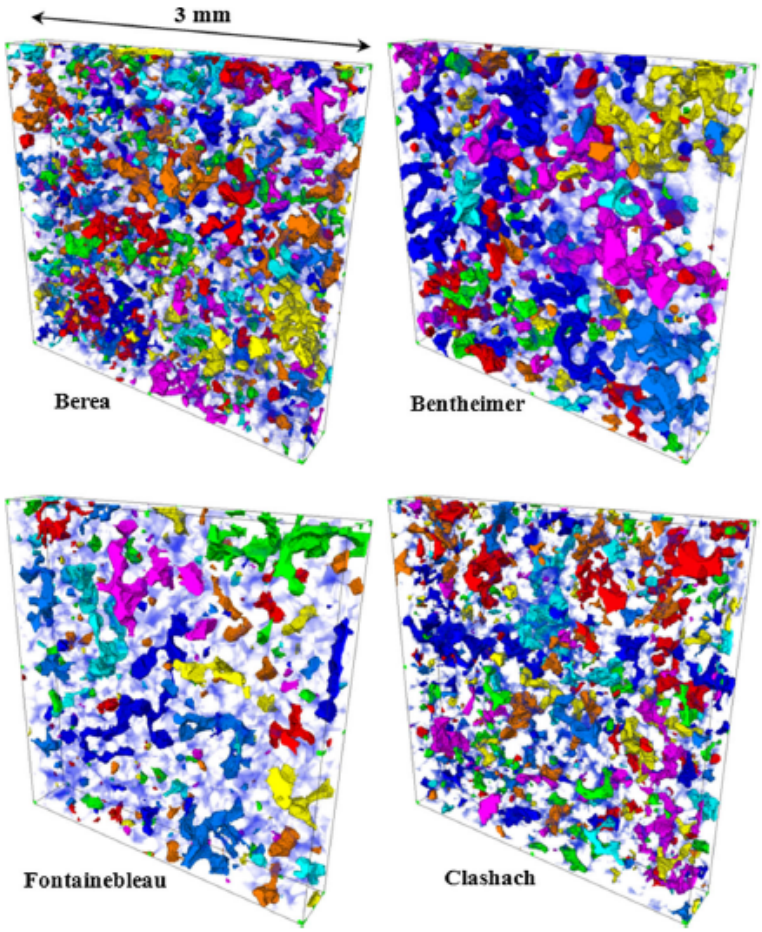


Figure 52 : Phase eau huile à Sor par observation tomographique ((Oughanem 2013))

Dans le cas des roches mouillables à l'huile, lorsque la saturation en huile résiduelle est atteinte, le réseau d'huile dans le milieu poreux est déconnecté. L'huile est alors présente sous forme de plusieurs ganglions de taille variable. Un ganglion reste bloqué tant que la force qui le pousse est inférieure à la force qui le maintien derrière le seuil de pore. La force de dépiégeage est générée par la différence de pression ΔP aux bords du ganglion d'huile (de longueur L) créé par l'écoulement d'eau dans le cas du flooding et par la pression hydrostatique dans le cas de la centrifugation (ou force d'Archimède). La force de piégeage est la même dans les deux situations, il s'agit d'une force capillaire qui provient des restrictions géométriques dans le milieu poreux (noté r_s) et qui crée une barrière de pression de Laplace due à la tension interfaciale eau-huile γ_{ow}.

$$\Delta P = 2\gamma_{ow} cos\theta \left(\frac{1}{r_s} - \frac{1}{r_l}\right) \tag{3.6}$$

r_s est le rayon du petit seuil en aval du ganglion et r_l le rayon du seuil en amont. En considérant que r_s est bien plus petit que r_l on peut simplifier l'expression du seuil capillaire.

$$\Delta P = \frac{2\gamma_{ow} cos\theta}{r_s} \tag{3.7}$$

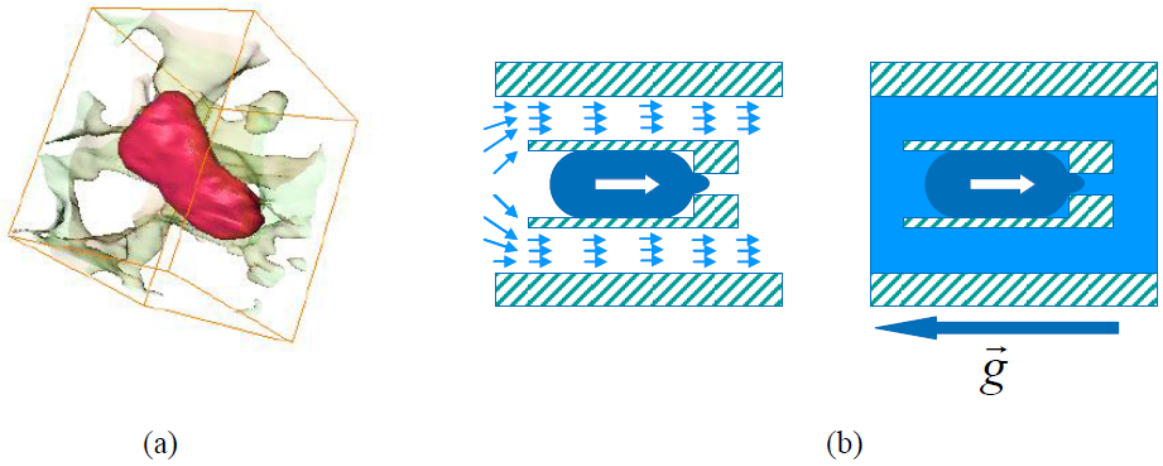


Figure 53 – Un ganglion d'huile piégé (a) peut-être schématisé comme sur la partie (b) permettant ainsi de faire un bilan de force locale. *(b) à gauche : balayage à l'eau, (b) à droite : champ de gravité effective*. Le bilan de force est analogue dans les deux cas : une force dépiégeante (gradient de pression de l'écoulement ou hydrostatique) et une force piégeante (pression de Laplace pour le seuil capillaire)

Dans le cas de l'écoulement, le gradient pression aux bornes du ganglion s'écrit avec l'équation de Darcy :

$$\Delta P = \frac{dP}{dx} L = \frac{\mu_w}{K_0 k_{rw}} \frac{Q}{A} L = \frac{\mu_w}{K_0 k_{rw}} \overline{U_w} L \tag{3.8}$$

Dans le cas avec gravité effective ($g^* = \omega^2 R$, ω vitesse de rotation de la centrifugeuse et R son rayon de rotation), il s'agit d'une différence de pression hydrostatique :

$$\Delta P = \Delta\rho g^* L \tag{3.9}$$

Dans le cas général d'un échantillon de roche vertical sous écoulement, les deux pressions agissent. On peut alors les adimensionner et en écrivant l'égalité des pressions au seuil de dépiégeage, on obtient la relation d'équilibre suivante :

$$\frac{\mu_w \overline{U_w}}{\gamma_{ow}} + \frac{K_0 k_{rw} \Delta\rho g^*}{\gamma_{ow}} = \frac{2 cos\theta K_0 k_{rw}}{L r_s} \tag{3.10}$$

On retrouve ainsi l'expression du nombre capillaire :

$$N_c = \frac{\mu_w \overline{U_w}}{\gamma_{ow}} \tag{3.11}$$

Ainsi que l'expression du nombre de Bond :

$$N_b = \frac{K_0 k_{rw} \Delta\rho g^*}{\gamma_{ow}} \tag{3.12}$$

En introduisant le nombre sans dimension *Tr* (trapping number) représentant les forces dépiégeantes sur les forces piégeantes, on généralise les deux nombres précédents :

$$Tr = N_c + N_b = \frac{\mu_w \overline{U_w}}{\gamma_{ow}} + \frac{K_0 k_{rw} \Delta\rho g^*}{\gamma_{ow}} \tag{3.13}$$

Le seuil pour mobiliser le ganglion est le même dans les deux cas :

$$Tr_c = \frac{2cos\theta K_0 k_{rw}}{L r_s} \tag{3.14}$$

On voit donc apparaître un seuil critique de dépiégeage dépendant de la mouillabilité (angle de contact), de la géométrie du milieu (K_0, Kr_w et r_s) et de la taille des ganglions (L).

Pour un trapping number donné, les plus gros ganglions seront dépiégés. Dit autrement, le plus petit seuil critique se calcule avec les tailles de ganglions les plus gros. Pour une roche ayant une perméabilité de l'ordre 500 mD avec des seuils de pore de l'ordre de la dizaine de µm et pour des ganglions de 10 à 100 fois la taille du seuil, le nombre critique de dépiégeage se situe entre 10^{-4} et 10^{-3}.

3.3.2 Courbe de désaturation capillaire

Les travaux de Oughanem (Oughanem 2013) montrent également que la distribution de taille des ganglions suit une loi de puissance. Ainsi pour des tailles de ganglions variables, nous obtenons une plage de nombre capillaire (ou trapping number) pour le dépiégeage. Cette courbe s'appelle une CDC. Les CDC sont des données importantes en EOR, elles permettent d'évaluer les valeurs des nombres capillaires à atteindre pour dépiéger l'huile.
Dans le cadre de nos expériences, nous avons déterminé des courbes de désaturations capillaires en utilisant deux méthodes :

- Par centrifugation d'un échantillon préalablement saturé en huile, en appliquant une force gravitaire équivalente dépiégeant les ganglions d'huile. A chaque palier les mesures de saturation sont effectuées par résonance magnétique nucléaire (RMN).

- En utilisant le montage CAL-X par injection de tensioactif à différents débits, on observe le dépiégeage de l'huile. La saturation en huile est mesurée en continu grâce au dispositif de radioagraphie par Rayons-X.

3.3.3 Mesures des CDC par centrifugation et RMN

La méthode présentée ici permet d'obtenir une courbe de désaturation capillaire en utilisant une centrifugeuse et une méthode de mesure de saturation RMN. D'une mise en œuvre aisée, la centrifugation permet de déterminer en parallèle la CDC de plusieurs petits échantillons, et ce, de manière beaucoup plus rapide que par les méthodes classiques de balayage avec des grands échantillons.

Les échantillons utilisés sont de petite taille (1,5 cm de long et de diamètre), ce qui permet de centrifuger à grande vitesse (jusqu'à 10^5 fois la valeur de l'accélération de la gravité). 5 ordres de grandeurs sont alors accessibles sur la force de dépiégeage des ganglions d'huile.

La mesure de la saturation sur les échantillons de petite taille est délicate, et la technique de relaxométrie RMN est mise en œuvre pour sa grande sensibilité. L'appareil RMN mesure l'évolution temporelle de l'aimantation transverse. Après transformation, le signal donne le spectre des temps de relaxation transverse (dite T2), l'intensité de ce signal dépend de la quantité de protons dans le système. Pour mesurer une saturation, si on connait le volume poreux, il faut s'affranchir du signal généré par une des deux phases, eau ou huile. Ceci peut être obtenu soit en travaillant avec une saumure à base d'eau deutérée, soit en ajoutant à une saumure standard un sel paramagnétique qui augmente considérablement la vitesse de relaxation transverse de l'eau, donc diminue le T2 de façon à ce qu'il n'y ait pas de recouvrement entre les signaux de l'huile et de l'eau dans le spectre de distribution des temps de relaxation.

Séquence expérimentale :

- Les échantillons sont préparés: longueur : 1,5 cm et diamètre 1,5 cm (découpe, nettoyage éventuel et séchage) ;
- Les échantillons sont imbibés sous vide d'une saumure et leur volume poreux est mesuré par pesée ou RMN ;
- Les échantillons sont montés en centrifugeuse et un drainage à l'huile est réalisé. L'échantillon est alors en saturation résiduelle en eau (*Swi*) . La valeur de Swi est mesurée par RMN ;
- Les échantillons sont démontés et immergés dans la saumure. Une imbibition spontanée a lieu et en fin d'imbibition, l'échantillon est à saturation résiduelle en huile (*Sor*). La valeur de Sor est mesurée ;
- Les échantillons sont placés en cellule de centrifugation et centrifugés à une gravité effective g* pendant deux heures ;
- Les échantillons sont démontés et une mesure de saturation est effectuéepar RMN ;
- Les deux dernières séquences sont répétées en augmentant g* de 1 à 10^6 g.

Mise en œuvre

La séquence ci-dessus a été réalisée sur trois échantillons de grès de Clashach issus du même bloc que celui de toutes les expériences réalisées au cours de ces travaux de thèse. Les évolutions mesurées de la saturation en fonction de la gravité effective sont représentées sur la Figure 54.

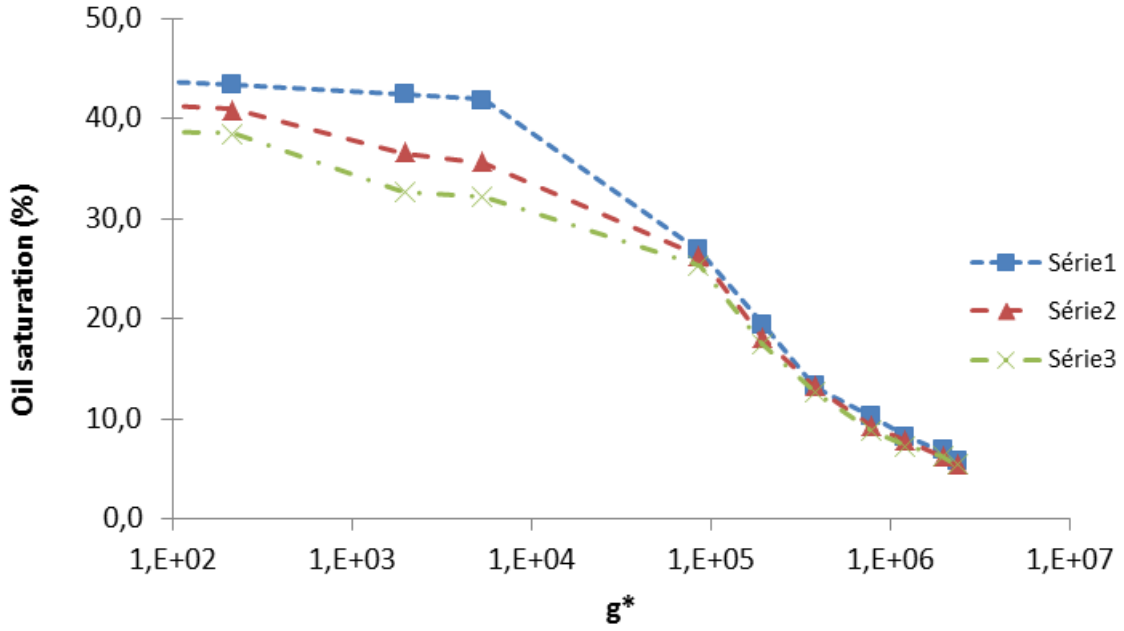


Figure 54 – Saturation en huile en fonction de la gravité effective pour trois échantillons de grès de Clashach

On observe donc une variabilité de la saturation en huile résiduelle des échantillons d'environ 5%. Mais au cours de la désaturation capillaire, la reproductibilité est correcte pour les trois échantillons. La tendance de diminution de la saturation est respectée et à partir d'une gravité effective aux alentours de 10^5, les courbes se superposent, la saturation s'uniformise au fur à mesure que les forces dépiégeantes augmentent. La tendance est conforme à une loi de désaturation capillaire.

Obtention de la courbe de désaturation capillaire

A partir des données expérimentales de saturation en huile mesurée en fonction de la vitesse de rotation (exprimée en gravité effective), on peut obtenir la saturation résiduelle en huile normalisée en fonction du Trapping number *Tr* (calculé ici par le nombre de Bond). La perméabilité des échantillons est nécessaire ainsi que la donnée de la perméabilité relative à l'eau.

Dans l'analyse présentée les perméabilités relatives n'ont pas été mesurées. En l'absence de ces données, la perméabilité relative à l'eau est fixée à la valeur 1. Cette hypothèse est bien sûr assez forte et ce point doit être précisé dans les développements futurs.

On obtient alors les courbes de désaturation capillaire suivantes :

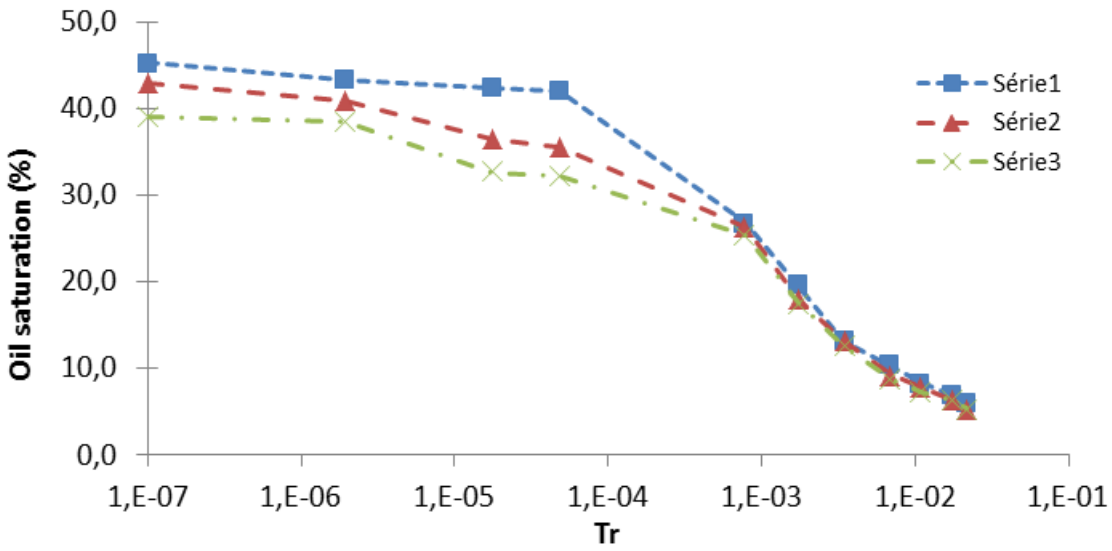


Figure 55 – CDC des trois échantillons de grès de Clashach

Les CDC ainsi obtenues nous donnent par conséquent un certain nombre d'informations très importantes pour la mise des échantillons à saturation en huile résiduelle ainsi que concernant la production d'huile :

- La saturation en huile résiduelle de notre système est comprise entre 35 et 45%. Cette huile reste immobilisée pour un trapping number compris entre $10^{-7} < Tr < 5.10^{-5}$, équivalent à des nombres capillaires de même valeur.

- A partir de $Tr_c = 5.10^{-5}$, le trapping number critique (équivalent au nombre capillaire critique), l'huile est mobilisée et commence à être produite significativement.

- Lorsque le trapping number atteint 5.10^{-2}, la saturation en huile est proche de 10%, la production d'huile devient très faible en augmentant le capillaire.

3.3.4 Détermination des CDC à partir du montage CAL-X

On peut aussi à l'aide du montage du CAL-X mesurer des courbes de désaturation capillaire. Pour ce faire, on utilise aussi le petit échantillon identique à celui utilisé pour la

mise en place des courbes de perméabilités relatives. On choisit six paliers de débit d'injection de la formulation tensioactive pour lesquels on obtient des nombres capillaires de dépiégeage. On veille à prendre en compte la valeur de la saturation en huile grâce au dispositif Rayons-X de la cabine lorsque la pression est à l'équilibre.

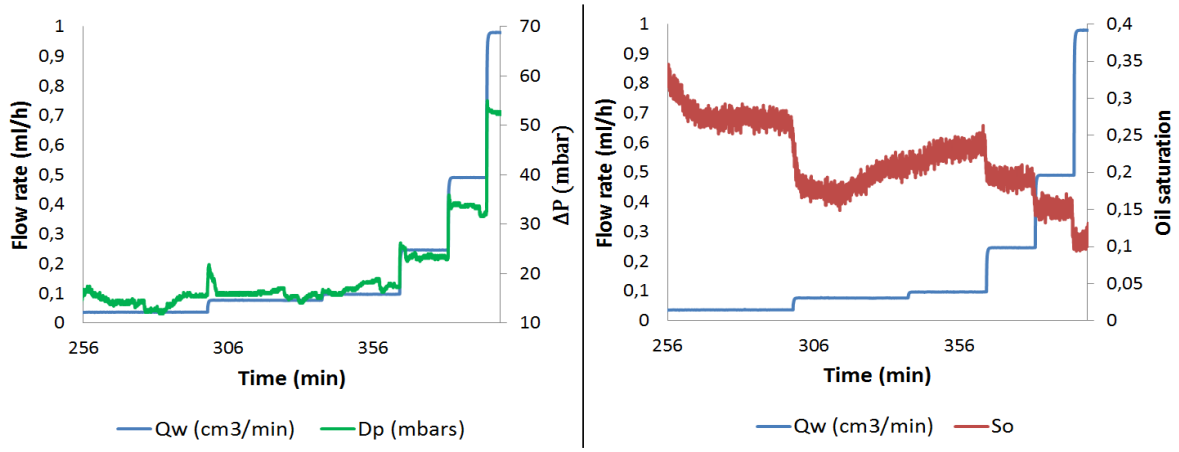


Figure 56 – Paliers de débits pour la mise en place des CDC à partir du montage CAL-X.
A gauche : évolution de la pression, à droite : évolution de la saturation en huile

On mesure la valeur de la saturation en huile pour chaque nombre capillaire correspondant à un palier de débit d'injection de la formulation tensioactive et on obtient la courbe de désaturation capillaire. L'opération a été réalisée avec trois petits échantillons différents issus du même bloc de Clashach que celui utilisé pour prélever l'ensemble des échantillons présentés dans la thèse.

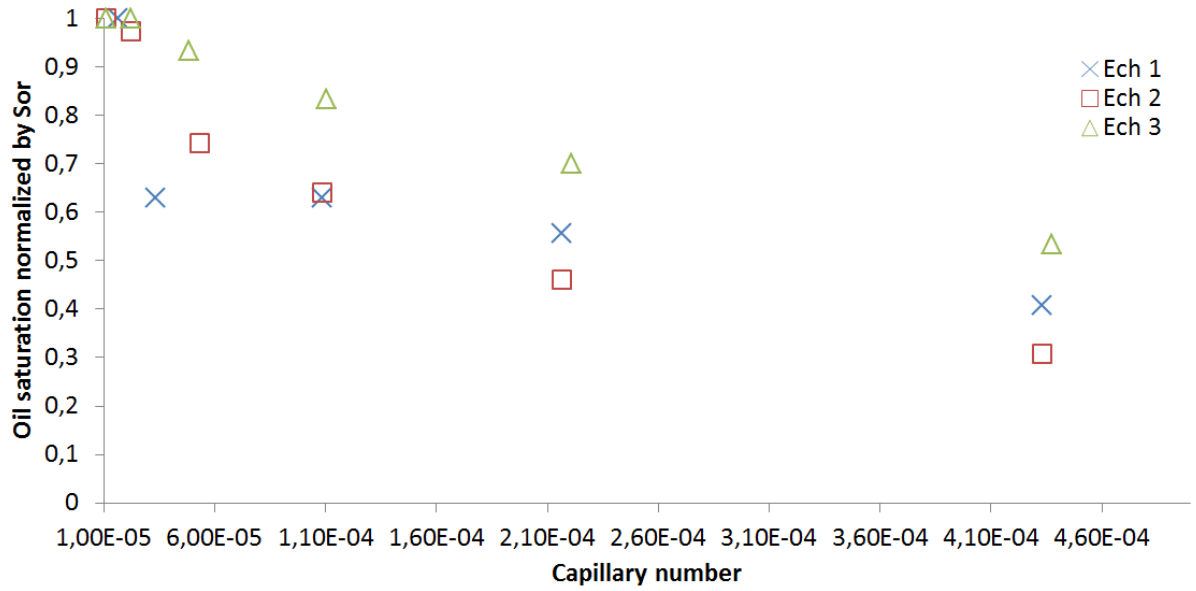


Figure 57 – Courbe de désaturation capillaire obtenue par le montage CAL-X pour trois échantillons

D'après la Figure 57, on obtient une dispersion sur les 3 courbes de désaturation capillaire, la répétabilité n'est pas parfaite. L'explication tient certainement à la variabilité géométrique des échantillons qui sont issus du même bloc mais qui sont légèrement différents les uns des autres. De plus, pendant l'expérience, nous avons constaté que la paroi latérale des échantillons s'est trouvée quelque peu altérée (effritement) par le montage/démontage, Ceci peut aussi expliquer une partie de la dispersion.

L'information la plus importante pour nous, dans ces expériences, est la détermination du capillaire critique où l'on commence à observer une production de l'huile résiduelle et malgré les différences entre les CDC, ce nombre reste proche de 5.10^{-5}, identique à la valeur obtenue avec la CDC déterminée par centrifugation.

La CDC la plus pertinente serait celle réalisée à partir du troisième échantillon car uniquement utilisée à cette fin (pas d'altération des échantillons). Sur la Figure 58 on compare les CDC des échantillons #3 à l'aide du montage CAL-X et par centrifugation.

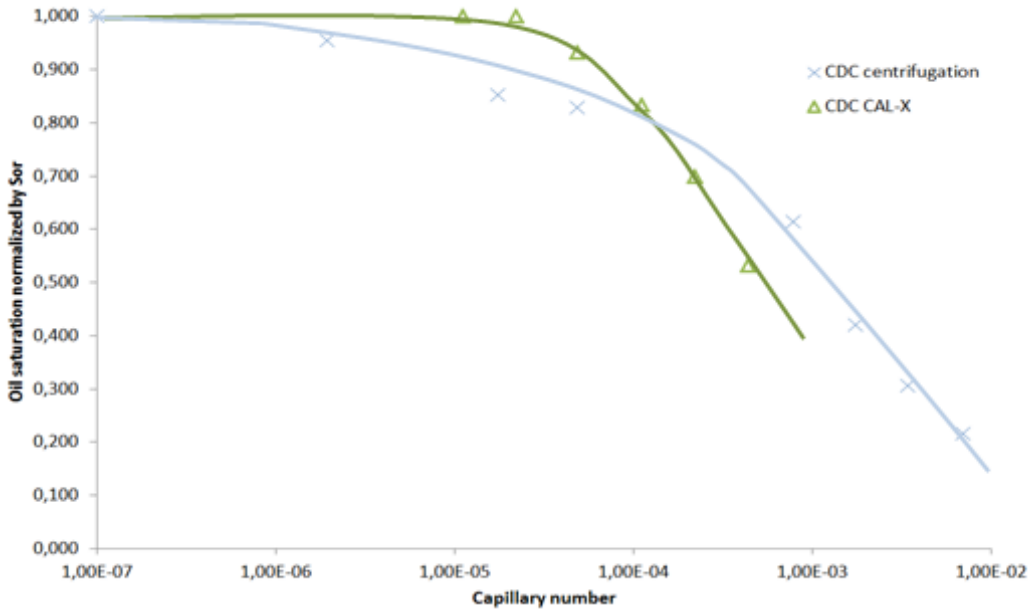


Figure 58 – Comparaison des CDC obtenues par centrifugation et par le montage CAL-X

Les deux courbes de désaturation capillaire des échantillons #3 obtenues par centrifugation et par montage CAL-X ont une tendance proche mais ne sont pas parfaitement superposées. Le capillaire critique se situe bien autour de 5.10^{-5} dans les deux cas et la tendance de la désaturation capillaire est bien respectée.

3.3.5 Mise à Swi des échantillons par centrifugation puis mise à saturation en huile résiduelle par imbibition spontanée

Les expériences en huile ont été réalisées à partir d'un nouvel échantillon, l'échantillon D de longueur $L = 10.0cm$ et de diamètre $D = 2{,}2cm$ et de masse $m_{sec} = 85{,}2g$. L'échantillon est préalablement saturé en saumure NaCl de concentration 5g/l, il est ensuite pesé, on note $m_w = 91{,}3g$ la masse de l'échantillon en saumure, on mesure par conséquent un volume de pore 1 VP=6 ml, ainsi, la porosité calculée est donc $\emptyset = 15{,}8\%$. Une fois ce dernier saturé en saumure, il est introduit dans l'un des godets de la centrifugeuse. Sur les bords de ce godet, on introduit de l'huile. Puis la centrifugeuse est lancée pour 16h avec une vitesse de rotation de 3500 tour/min correspondant au temps nécessaire pour obtenir une saturation élevée en huile dans l'échantillon et atteindre le Swi, saturation en eau d'équilibre entre la phase huile et la phase aqueuse. Le remplacement d'une fraction de l'eau en place dans l'échantillon par l'huile correspond à la phase de drainage. Une fois l'opération terminée, l'échantillon est de nouveau pesé. L'huile ayant ainsi drainé l'eau, la nouvelle

masse pesée est $m_{ow} = 90{,}2g$. La différence de masse entre l'échantillon 100% eau et après centrifugation correspond donc à la masse d'huile introduite par drainage dans l'échantillon. On mesure ainsi un volume d'huile introduit $V_o = 4{,}5\, ml$. Soit une saturation en eau de l'échantillon $S_{wi} = 26\%$.

L'échantillon ainsi à S_{wi} est introduit dans une cellule à imbibition et totalement entouré d'eau. On effectue ainsi une imbibition spontanée afin de mettre l'échantillon à saturation en huile résiduelle. L'opération dure trois semaines, le temps nécessaire pour évacuer l'huile par imbibition spontanée. Ce délai est très dépendant du type de roche sur laquelle on travaille mais dans le cas d'un grès de Clashach (relativement poreux et perméable) il suffit en réalité de quelques jours. Nous avons choisi par sécurité un délai de 3 semaines Le dispositif est présenté sur la Figure 59.

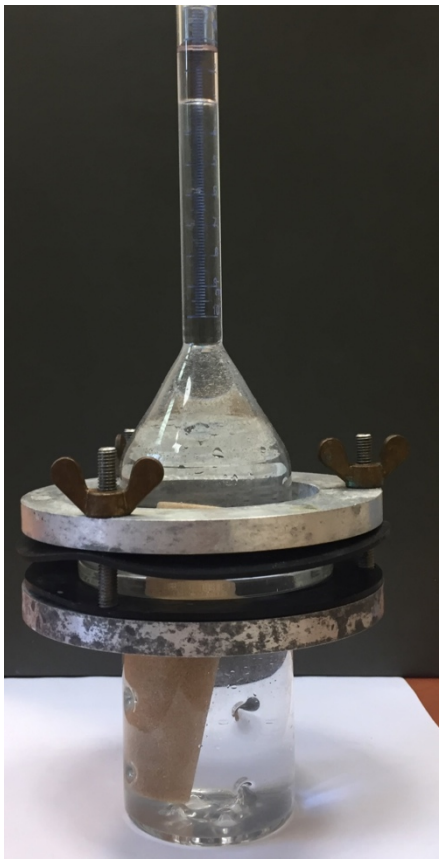


Figure 59 – Imbibition spontanée de l'échantillon

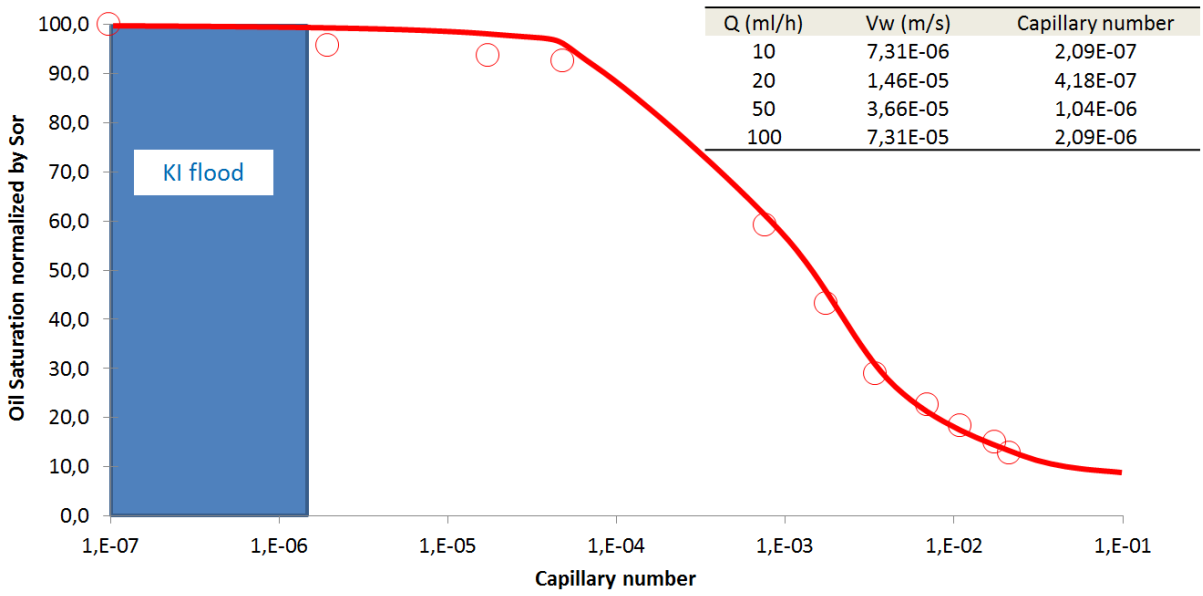
Ainsi une certaine quantité d'huile est dépiégée et remonte à la surface. Le volume d'huile ainsi produit est mesuré et vaut $V_{out} = 2{,}6ml$, la sautration en huile résiduelle vaut donc $Sor = 0{,}31$. Il est important de noter que cette valeur est plus faible que celle

déterminée pour les CDC avec des petits échantillons. Il semble en effet exister une petite variabilité entre les différents plugs mais aussi des différences entre les mécanismes d'imbibition spontanée et d'imbibition forcée.

Ayant saturé l'échantillon à saturation en huile résiduelle et connaissant les nombres capillaires de dépiégeage de l'huile, nous pouvons commencer l'injection de la formulation dans l'échantillon.

3.4 Dispersion du traceur passif à saturation en huile résiduelle

La séquence expérimentale est identique à celle qui concerne l'étude de la dispersion du traceur passif dans le cas monophasique en milieu poreux à la différence que l'échantillon est monté dans la cellule avec une saturation en huile résiduelle (il s'agit de l'échantillon D). La saumure est donc formulée à partir d'un mélange de NaCl 5g/l et de KI de concentration 20 ppm. La solution doit donc être injectée à des débits correspondant à des nombres capillaires inférieurs au capillaire critique. On évite de manière générale d'injecter les fluides à très bas débit pour éviter des temps d'expérience trop longs qui posent des problèmes de stabilité dans le temps (variation de température, dérive de la backpressure, ...). Sur la Figure 60, on montre qu'en sélectionnant des débits d'injection de 10, 20, 50 et 100 ml/h, on est bien en deçà du nombre capillaire critique obtenu sur la CDC. En se plaçant à ces débits d'injection, nous étudierons donc la dispersion du traceur passif à saturation en huile résiduelle sans déplacement d'huile.



Q (ml/h)	Vw (m/s)	Capillary number
10	7,31E-06	2,09E-07
20	1,46E-05	4,18E-07
50	3,66E-05	1,04E-06
100	7,31E-05	2,09E-06

Figure 60 – Nombres capillaires pour l'injection de la formulation traceur passif sans déplacement d'huile reportés sur la CDC

On injecte deux volumes de pore de la formulation traceur passif aux différents débits d'injection non dépiégeants puis deux volumes de pore de saumure NaCl 5g/l seule, on obtient les courbes de percées de la Figure 61.

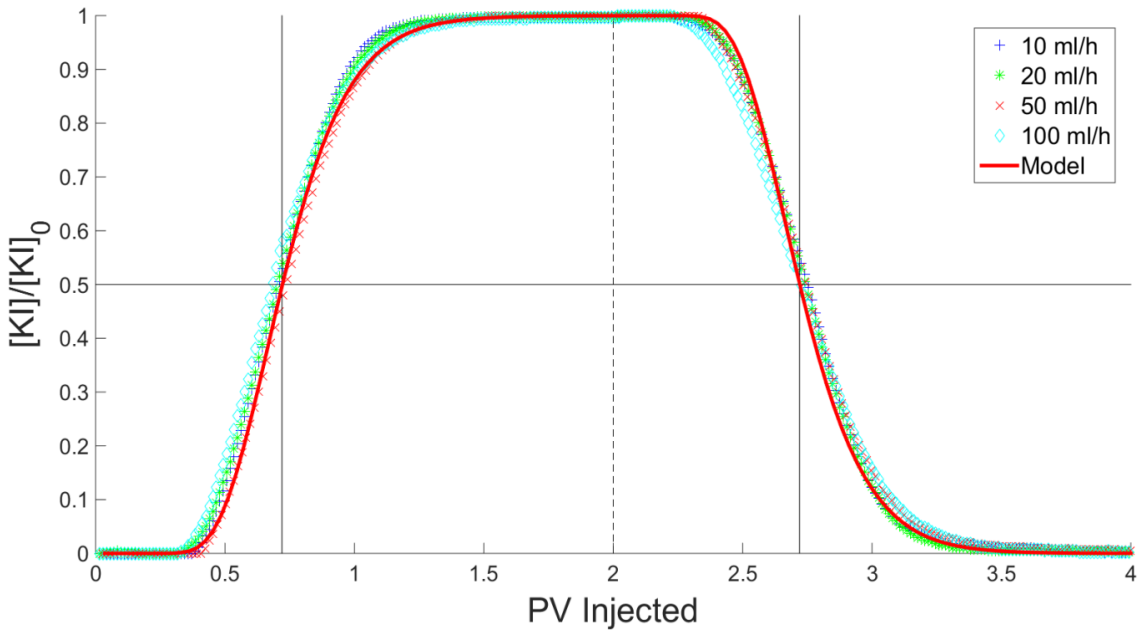


Figure 61 – Courbe de percée du KI à saturation en huile résiduelle de 0,28 à différents débits d'injection

La courbe de percée a même allure que dans le cas monophasique et les courbes pour les différents débits sont bien superposées, on est une fois de plus dans le régime de dispersion hydrodynamique où la dispersion est proportionnelle au débit. On observe que la concentration adimensionnée ne vaut plus 0,5 lorsqu'un volume de pore est injecté mais lorsqu'un volume de pore, moins la saturation en huile résiduelle, est injecté. La courbe de percée croise la droite C/C0=0,5 pour un volume de pore injecté de 0.72 correspondant au volume de pore moins la saturation en huile résiduelle.

Un point expérimental important réside dans le fait qu'il est impératif que le débit dans le milieu poreux soit à t=0 le débit que l'on instaure via la pompe d'injection (c'est-à-dire que la différence de pression entre l'amont et l'aval de la cellule soit à l'équilibre à t=0). C'est après quelques problèmes de répétabilité sur nos expériences que nous avons modifié le protocole expérimental. Nous avons opté pour un déclenchement de la pompe avant injection dans le milieu afin de la laisser se placer en régime permanent. On observe la montée en pression en laissant fermé la vanne d'accès à l'échantillon, vanne que l'on ouvre à t=0 lorsque la pression correspondant au débit injecté (déduite d'après la perméabilité absolue) est atteinte. Nous trouvons à l'aide des courbes de percée du traceur passif une saturation en huile résiduelle de 0,28 alors que celle déterminée initialement était de 0,31.

En plaçant sur une même graphique les résultats expérimentaux et la solution de l'équation de convection/dispersion, on obtient qu'à saturation en huile résiduelle, le nombre de Peclet est plus faible, il vaut ici $Pe_{Sor} = 30$. Avec une saturation en huile dans le milieu, la dispersion augmente.

Nous avons réalisé des injections de traceur pour différentes saturations en huile dans l'échantillon.

Pour cela, on chasse une partie de l'huile par balayage au tensioactif (voir chapitre 5) Afin de dépiéger l'huile, on sélectionne des débits d'injection de la formulation à des valeurs de 200, 300 et 400 ml/h. Les saturations ainsi engendrées par chaque injection selon la CDC sont reportées sur la Figure 62. Les saturations sont mesurées expérimentalement à l'aide du montage explicité dans le prochain chapitre. On rappelle que le nombre capillaire est défini comme étant le ratio entre les contraintes visqueuses et capillaires et que la tension interfaciale de la formulation tensioactive NaCl 5 g/l + SDBS 1 g/l vaut 0,45 mN/m et que le ratio de viscosité $\mu_o/\mu_w = 1{,}32$.

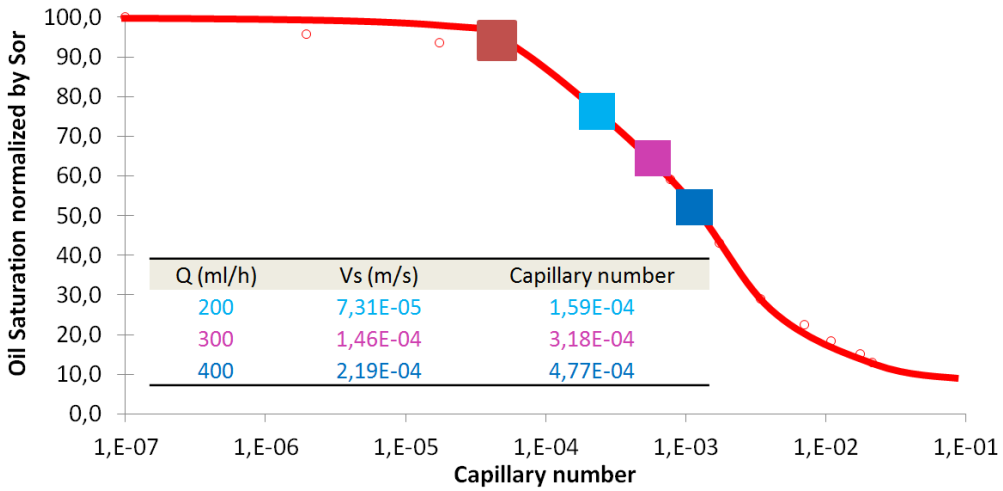


Figure 62 – Prédiction du dépiégeage de l'huile à partir de la CDC par injection de la formulation EOR

A chaque palier, on réalise un test d'injection de traceur passif à un débit de 50 ml/h suivi de l'injection de 2,5 VP de formulation traceur puis de 2,5 VP de saumure. On obtient les trois courbes de percée suivantes superposées avec la courbe de percée obtenue préalablement où l'on observe la dispersion à Pe_{Sor} sur la Figure 63.

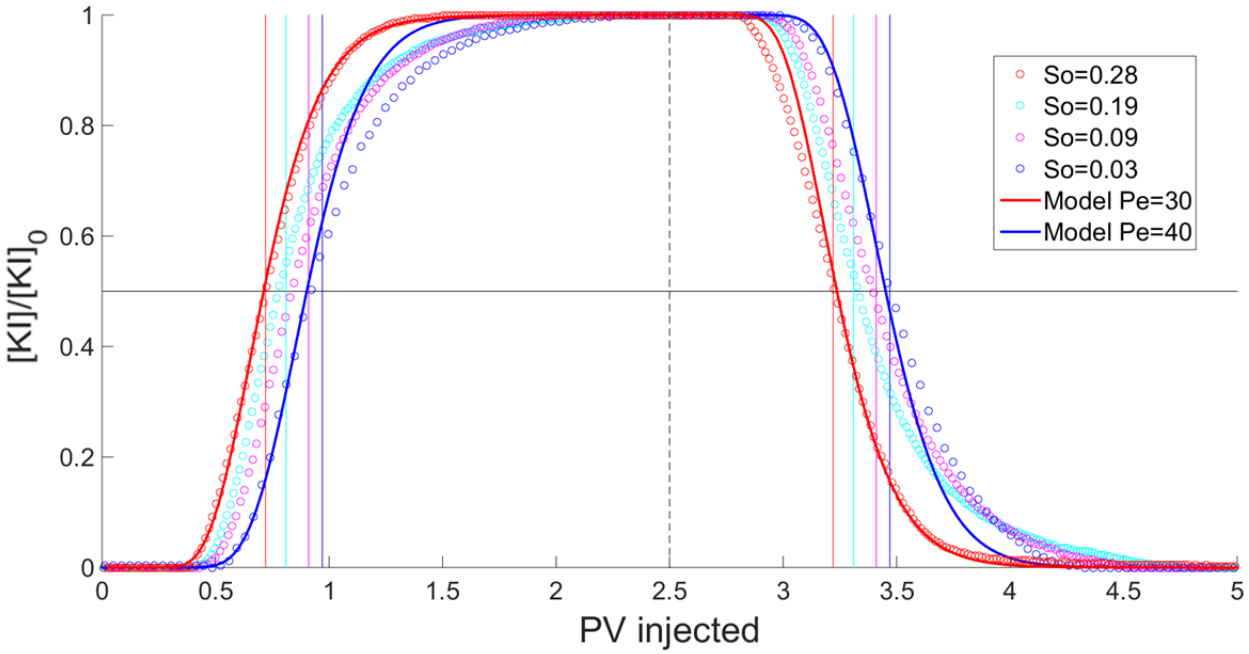


Figure 63 – Dispersion de la formulation traceur passif à différents niveaux de saturation, on superpose les résultats expérimentaux à la solution analytique de Perkins et Johnston. Pour la saturation en huile résiduelle, $Pe_{Sor} = 30$. Pour une saturation en huile de 0,03, $Pe = 40$

On observe un décalage successif des courbes de percées où l'on retrouve approximativement la valeur de la saturation en huile pour chaque palier de désaturation. On observe bien une augmentation de la valeur du nombre de Peclet lorsque la saturation en huile diminue, traduisant une diminution relative du phénomène de dispersion par rapport à la convection.

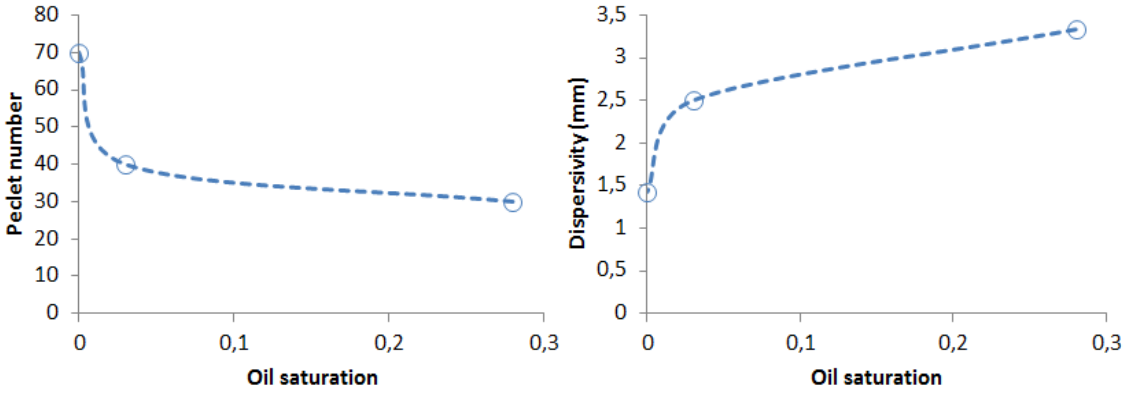


Figure 64 – Evolution du nombre de Peclet et de la dispersivité du milieu en fonction de la saturation en huile. Le nombre de Peclet est déterminé à partir de la superposition des courbes expérimentales de percée et le modèle analytique de Perkins et Johnston.

La présence d'huile à ces niveaux de saturation est caractéristique de la présence de ganglions dans les pores du milieu poreux naturel participant à une augmentation de l'hétérogénéité du milieu. La dispersivité caractérisant l'hétérogénéité d'un milieu poreux, on observe bien que celle-ci augmente lorsque le milieu devient plus hétérogène.

Ce résultat est primordial pour étudier correctement le transport des molécules tensioactives dans le milieu poreux à saturation en huile résiduelle puisque ces dernières, en plus d'être dispersées comme un traceur, sont adsorbées, comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent.

3.5 Transport du SDBS à saturation en huile résiduelle

Comme pour la formulation traceur passif, on cherche à injecter la formulation tensioactive en deçà du nombre capillaire critique. La tension interfaciale entre l'huile et la formulation tensioactive étant 100 fois plus basse, les débits d'injection pour ne pas dépiéger l'huile sont beaucoup plus faibles. On réalise par conséquent l'injection de la formulation

tensioactive à des débits de 10, 20 et 40 ml/h. Comme on le voit sur la Figure 65, les débits sont proches mais en deçà du capillaire critique qui entraînerait un dépiégeage de l'huile.

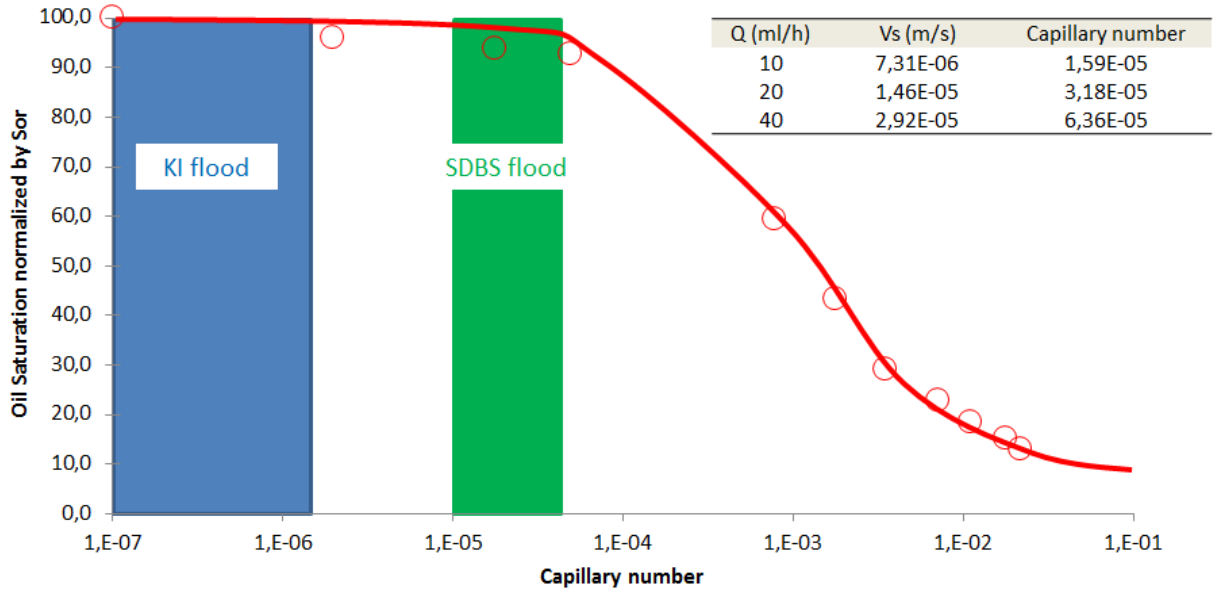


Figure 65 - Nombres capillaires pour l'injection de la formulation tensioactive sans déplacement d'huile reportés sur la CDC

On réalise donc l'injection pour ces trois débits d'un volume équivalent à 3,5 volumes de pore de la formulation tensioactive, puis de 3,5 volumes de pore de saumure NaCl 5g/l. Les courbes de percées ainsi obtenues sont tracées sur la Figure 66.

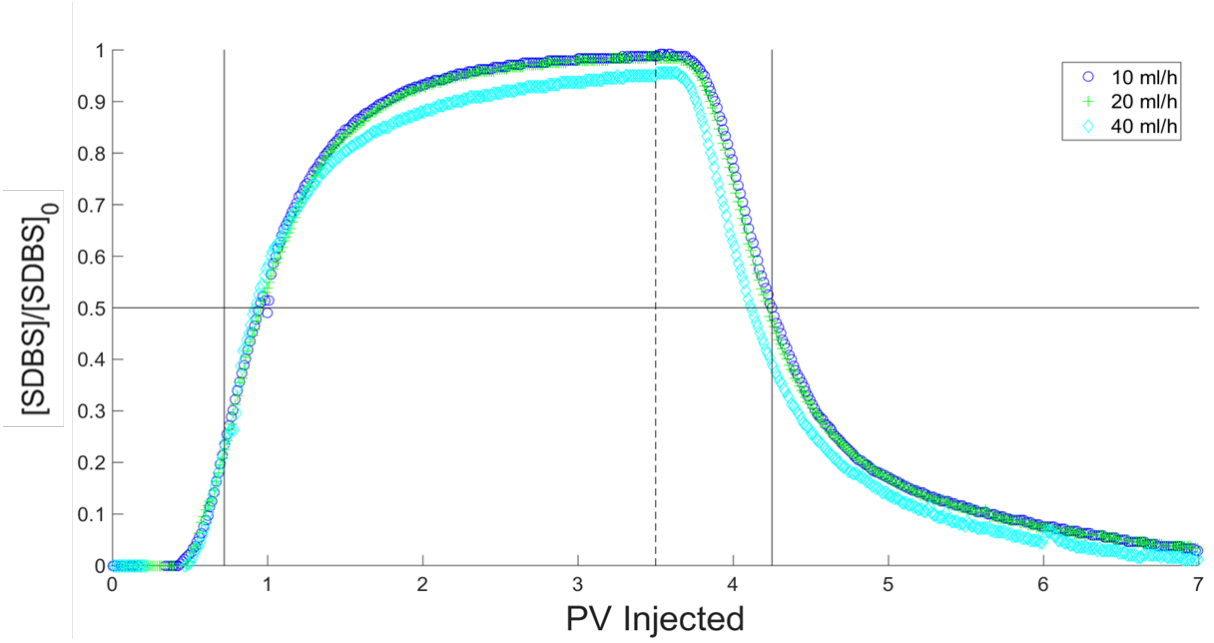


Figure 66 – Courbes de percée du SDBS dans le milieu poreux à saturation en huile résiduelle.

Les courbes de percée ressemblent en tout point à celles du chapitre précédent à bas débit dans le cas monophasique avec le SDBS, à l'exception près qu'elles sont translatées de la saturation en huile résiduelle. Pour le dernier débit de 40 ml/h, après 3,5 volumes de pore de formulation tensioactive injectée, la concentration adimensionnée ne vaut pas 1, les sites d'adsorptions du milieu poreux ne sont pas encore tous occupés. Concernant la désorption, elle est, comme dans le cas monophasique, identique quels que soient les débits d'injection. On observe un décalage pour la désorption à 40 ml/h tout simplement dû au fait que la concentration adimensionnée de 1 n'est pas retrouvée à la fin de l'adsorption, il y a donc moins de tensioactif à dessorber.

Comme dans le chapitre précédent, nous essayons de valider l'utilisation du modèle de Langmuir cinétique pour la modélisation du transport de tensioactif en milieu poreux. Le paramètre nombre de Peclet est déterminé à l'aide du cas monophasique à saturation en huile résiduelle, $Pe = 30$. La capacité d'adsorption de la roche est la même que dans le chapitre précédent puisque l'échantillon est un grès de Clashach issu du même bloc, $Q^* = 0.25 g/l$.

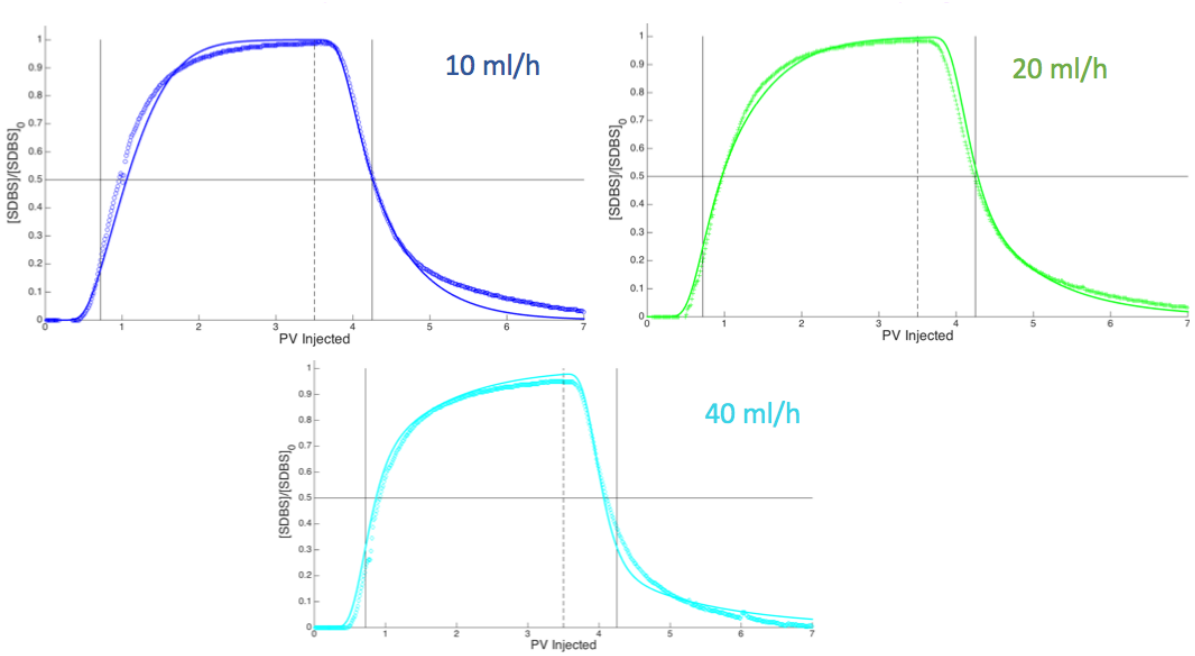


Figure 67 – Superposition des courbes de percée du SDBS en milieu poreux naturel avec le modèle de Langmuir cinétique.

Sur la Figure 67, on superpose les courbes expérimentales de percée du SDBS obtenues et la résolution numérique du modèle d'adsorption de Langmuir cinétique.

En choisissant des paramètres d'ajustement d'adsorption $k_a = 2.2\ 10^{-4}\ l/(g.s)$ et de désorption $k_d = 2.6\ 10^{-4}\ s^{-1}$ identique à ceux de la partie 2.4.3 on en déduit que la présence d'huile dans le système n'a pas d'influence sur les paramètres d'adsorption et de désorption dans les conditions que nous avons explorées. On peut donc fixer ces paramètres grâce aux expériences coreflood avec le cas monophasique pour modéliser le transport du tensioactif en présence d'huile. En veillant toutefois à prendre en compte l'influence de la présence d'huile sur la dispersivité.

Ce qu'il faut retenir…

- Afin de mettre en évidence le nombre capillaire critique où l'on commence à observer une mobilisation de l'huile on trace les courbes de désaturation capillaire à l'aide de deux expériences : par centrifugation et par montage CAL-X.
  On détermine ainsi $Nc_{critique} = 5.10^{-5}$. Les débits d'injection pour étudier le transport du tensioactif sans mobilisation de l'huile résiduelle doit être inférieur à 50 ml/h.
- Une fois la saturation en huile résiduelle atteinte par centrifugation et imbibition spontannée, on place l'échantillon de grès de Clashach dans le montage coreflood. On réalise alors le test de dispersion du traceur passif à saturation en huile résiduelle. On observe de nouveau que la dispersion est proportionnelle au débit d'injection.
- La diminution de la saturation en huile de l'échantillon à pour effet de diminuer la dispersivité du milieu.
- La modèlisation du transport du tensioactif dans le milieu poreux à saturation en huile résiduelle reproduit très bien les courbes expérimentales en utilisant le modèle de langmuir cinétique.

Dans le chapitre suivant…

Avant de nous attarder sur la production d'huile pour des débit d'injections plus élevés dans le milieu poreux naturel, nous nous attarderons sur les mécanismes observés lors du dépiégeage de l'huile grâce à un système microfluidique transparent.

Chapitre 4 – Etude du déplacement d'un mono-ganglion d'huile en milieu poreux modèle (micromodèle)

La microfluidique est aujourd'hui un domaine en plein essor, elle permet d'étudier à l'échelle microscopique des écoulements fluides dans un système solide dont on peut contrôler la géométrie et les propriétés. Les applications sont très variées et vont de la synthèse chimique à l'analyse haut débit en biologie en passant par les géosciences. Pour notre application dans le domaine de l'EOR, la microfluidique peut se révéler très intéressante pour visualiser les écoulements de fluides dans des géométries mimant un milieu poreux. En particulier, lorsque le nombre capillaire est suffisamment élevé pour permettre une mobilisation de l'huile piégée, nous souhaitons chercher à caractériser comment se déplace la phase huile.

En ingénierie réservoir, après la récupération secondaire, la saturation en huile résiduelle occupe entre 25 à 50% du volume de pore. La taille d'un ganglion individuel varie de 1 à 15 volume de pore (A. C. Payatakes 1982). La Figure 68 illustre l'huile piégée dans un micromodèle.

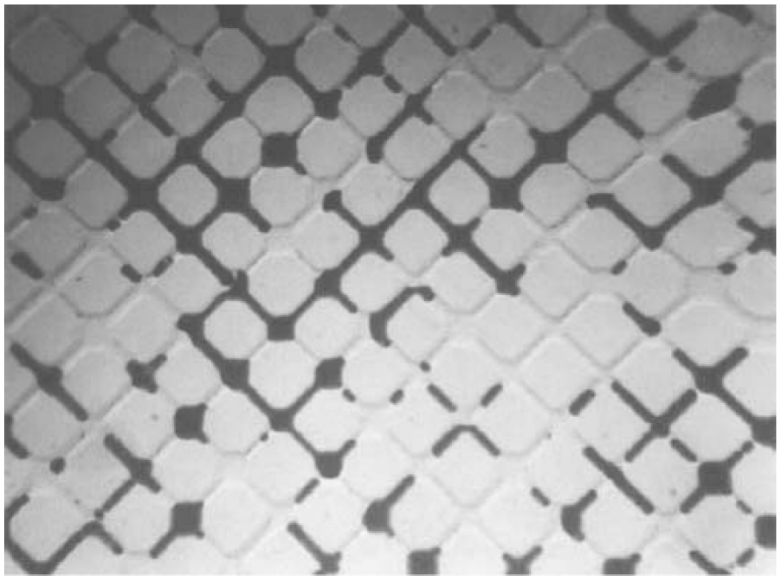


Figure 68 – Instantané de la configuration des ganglions d'huiles piégés dans un micromodèle (Avraam 1995)

A partir d'observations d'expériences réalisées à plusieurs débits, (Avraam 1995) montrent que le transport de l'huile dans le cadre d'un écoulement diphasique peut être classifié en quatre régimes d'écoulement : dynamique de grands ganglions, dynamique de petits ganglions, dynamique de gouttes et dynamique sous forme d'écoulement connecté.

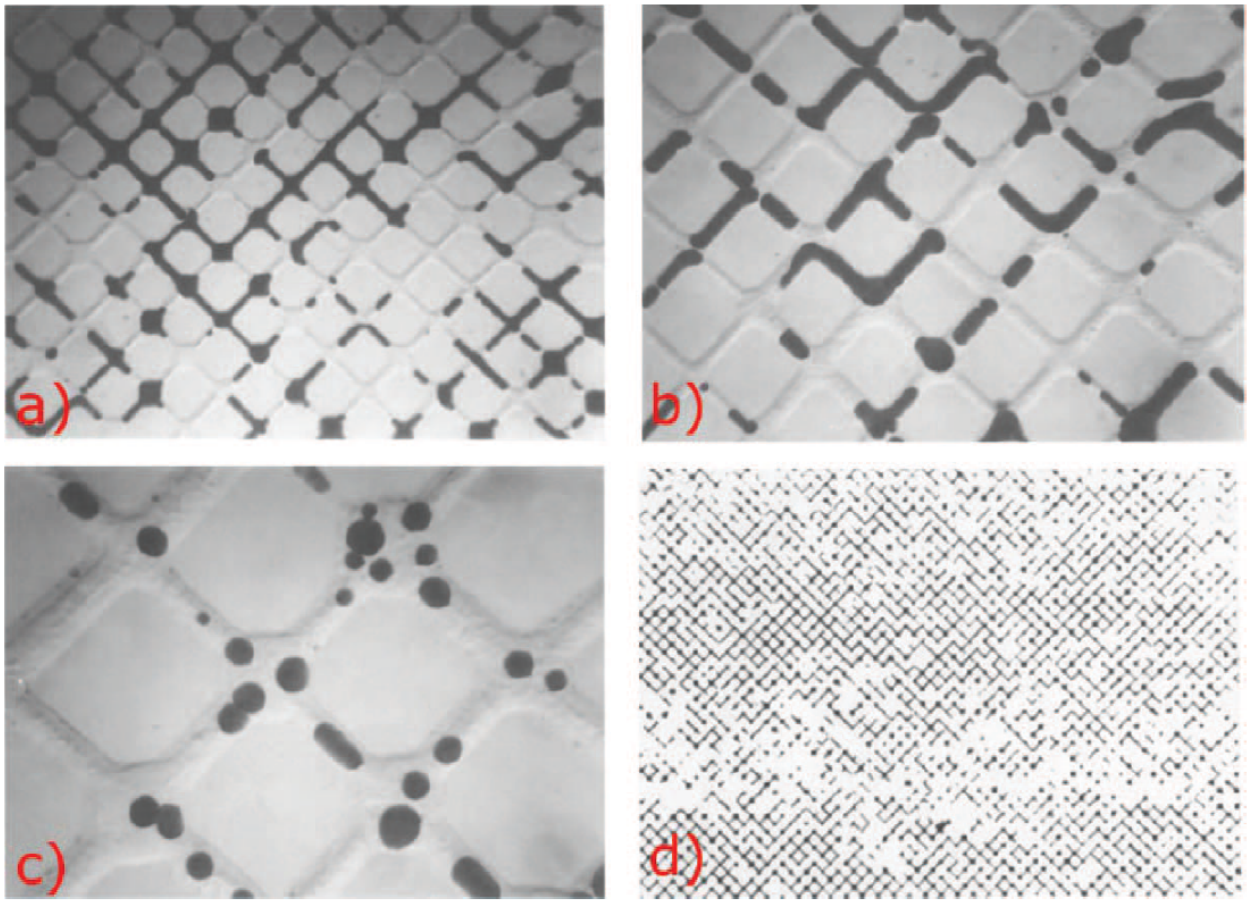


Figure 69 – Régimes d'écoulement des ganglions d'huile (Avraam 1995).
a) dynamique de grand ganglion, b) dynamique de petits ganglions, c) dynamique de goutte, d) dynamique sous forme d'écoulement connecté.

Dans les trois premiers cas, l'écoulement d'huile est dû aux mouvements de ganglions d'huile déconnectée. C'est aussi partiellement le cas pour l'écoulement connecté d'huile, où ils observent une grande quantité de gouttes et de ganglions d'huile mobiles aux bordures des chemins d'huile connectée.

Aux vus de notre problématique, nous voulons observer le comportement de ganglions d'huile isolés, car lorsque la saturation en huile résiduelle est atteinte, la phase huile est déconnectée. Nous avons ainsi conçu un microsystème poreux permettant de générer un seul

ganglion d'huile de manière isolée au sein d'un milieu poreux de géométrie contrôlée puis de le déplacer avec différents fluides dans une plage de nombre capillaire. L'une des contraintes pour la réalisation du micromodèle est de disposer d'un matériau avec une mouillabilité optimisée à l'eau, en effet l'influence de l'angle de contact joue un rôle important sur la dynamique du déplacement de l'huile (Mensire 2016) (Hugues 2000)

Plusieurs études expérimentales concernant la mobilisation et le transport d'un ganglion d'huile furent réalisées (Batycky 1978), (Rapin 1980) (K. M. Ng 1980) (R. T. Lenormand 1988). De même, des expériences concernant le transport de bulles dans des conduites à géométrie complexe (Legait 1982), (Olbricht 1983) ont également été réalisées. Mais finalement peu d'études, à part (A. D. Payatakes 1984) et (Rapin 1980) (A. D. Payatakes 1984), se sont consacrées à l'étude de la vitesse des ganglions d'huile. Rapin a mesuré la vitesse moyenne d'un ganglion unique dans un milieu poreux constitué de billes de taille aléatoire en utilisant une formulation tensioactive. Rapin montre que la vitesse moyenne du ganglion est plus petite que la vitesse interstitielle de la phase aqueuse, qu'elle augmente de manière monotone lorsque le nombre capillaire augmente mais aussi, pour un capillaire donné, elle est dépendante de la taille du ganglion initial.

Payatakes et Dias, ont fait l'effort dans leur publication (A. D. Payatakes 1984)de vérifier et de clarifier les travaux de Rapin en simplifiant le milieu poreux. Ils ont mesuré des vitesses de ganglions se déplaçant de façon rectiligne dans un milieu poreux plan constitué d'un assemblage de billes de verre régulier. Leur objectif est de mettre en évidence l'effet du rapport de viscosité $\kappa = \mu_o/\mu_w$ sur la vitesse de déplacement d'un ganglion d'huile unique. Leur conclusion est la suivante :

- Pour $\kappa > 1$ (rapport de viscosité défavorable), la vitesse moyenne des ganglions d'huile est plus faible que la vitesse intertitielle de la phase acquese.
- Pour $\kappa < 1$, (rapport de viscosité favorable) , la vitesse moyenne des ganglions d'huile est comparable à la vitesse intertitielle de la phase acqueuse.

Un autre aspect intéressant montré par Payatakes et Dias (A. D. Payatakes 1984) est la mise en évidence par l'observation expérimentale des phénomènes de déformation et de rupture des ganglions d'huile au cours de leur transport au sein du milieu poreux. Ce phénomène a été revisité récemment à la fois numériquement et expérimentalement (Yiotis 2013) (Chevalier

2015) dans un milieu poreux à géométrie plus complexe (et plus réaliste). La fragmentation et la coalescence des ganglions d'huile sont illustrées Figure 70. En régime permanent, ces phénomènes sont responsables d'une évolution de la taille des ganglions lorsque le nombre capillaire varie. En particulier, la taille maximale des ganglions varie comme N_{Ca}^{-1} .

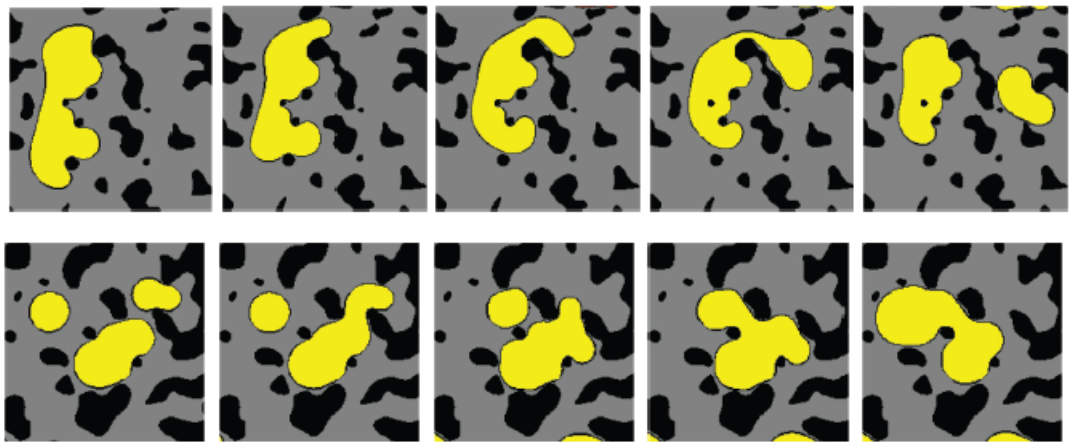


Figure 70 – Observation des phénomènes de fragmentation et de coalescence de ganglions d'huile à l'échelle du pore à partir de la modélisation Lattice-Boltzmann (A.G Yiotis, 2013)

Expérimentalement, Romano *et al.* (Romano 2011) ont étudié la dynamique et la modélisation du transport de l'huile au cours du drainage. En particulier, l'influence de la distribution des seuils de pores sur le dépiégeage de l'huile en fonction du nombre capillaire. Cette étude montre en particulier que le dépiégeage de l'huile commence à une nombre capillaire particulier, le *nombre capillaire critique* ou la phase huile commence à être mobilisé alors que pour des nombres capillaires inférieurs aucun mouvement n'est observé. Dans ce chapitre nous reviendrons sur ces observations propres au micromodèle que nous avons développé.

L'objectif de ce chapitre est d'étudier expérimentalement la dynamique du transport de l'huile dans un micromodèle (en deux dimensions) à géométrie complexe. Ainsi, nous reprendrons les travaux de Payatakes et Dias, puisqu'il sera question d'observer les phénomènes lors du transport des ganglions d'huile dans un milieu poreux à géométrie complexe (le micromodèle) pour plusieurs débits imposés, pour différents fluides de viscosité proche et en réalisant différents protocoles expérimentaux. Il sera aussi question de caractériser la vitesse de déplacement de l'huile dans un tel milieu.

4.1 Conception et fabrication du micromodèle

4.1.1 Stratégie, matériaux et design du système microfluidique

La géométrie du micromodèle a été dessinée avec Matlab, l'objectif étant d'obtenir un système poreux de structure géométrique aléatoire. L'image crée reproduit les caractéristiques statistiques d'une roche naturelle avec une porosité et une taille de pore contrôlées. Le masque généré est un micromodèle dont la taille de pore moyenne est de 150µm et une porosité moyenne de 70%.

Pour réaliser le milieu poreux, nous partons d'une image G dans l'espace de Fourier générée aléatoirement suivant une loi uniforme centrée dont l'écart-type $s(k)$ dépend de la fréquence spatiale $k = \sqrt{k_x^2 + k_y^2}$ et donné par :

$$s(k) = \frac{1}{k^{1/2}} e^{\left[-\frac{(k-k_0)^2}{w^2}\right]} \tag{4.1}$$

Dans cette équation, k_0 et w sont deux paramètres permettant respectivement de définir une fréquence spéciale moyenne et un désordre de cette fréquence.

On revient ensuite dans l'espace réel par transformée de Fourier inverse de l'image G (voir Figure 71). L'image obtenue posséde alors une longueur de corrélation $l_c = 2\pi/k_0$.

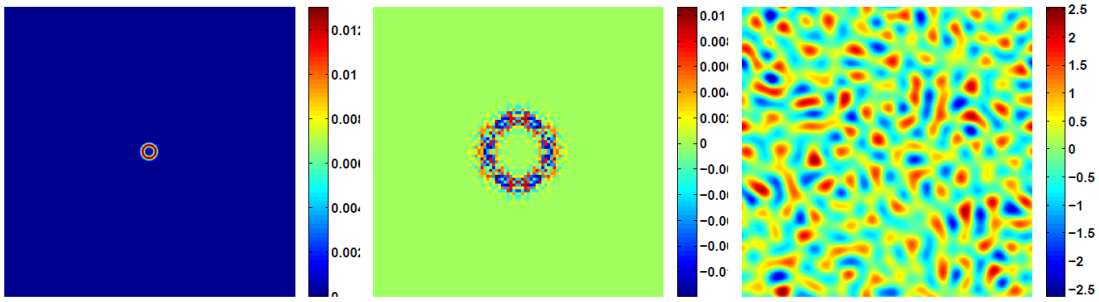


Figure 71 – Principe de génération du réseau aléatoire. *De gauche à droite :* écart-type $s(k)$ utilisé pour la génération des nombres aléatoires, suivi d'un exemple de cette génération (image zoomée), et enfin à droite, exemple du résultat de la transformée de Fourier inverse.

Nous avons choisi d'étudier des modèles de milieu poreux avec une taille de canaux homogène avec une longueur de corrélation $lc = 150\ \mu m$ représenté sur la Figure 72.

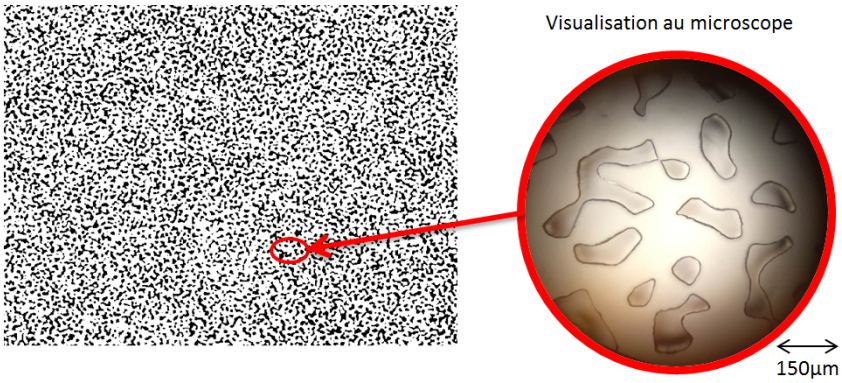


Figure 72- Géométrie poreuse du micromodèle (la porosité apparaît en plus claire)

L'objectif réside dans la capacité d'introduire de manière contrôlée un ganglion d'huile (mono-ganglion) en amont de la géométrie créée puis d'étudier de quelle façon ce ganglion va être mobilisé (déplacement, fragmentation) lors de balayages à l'eau ou à la formulation tensioactive à différents débits (soit différent nombre capillaire). La stratégie adoptée est la mise en place d'un canal central indépendant par laquelle l'huile est injectée. Le fluide pousseur (eau) sera lui injecté par une piscine d'injection sur toute la largeur du micromodèle. Les fluides seront évacués ensuite par la piscine de récupération selon le schéma de la Figure 73.

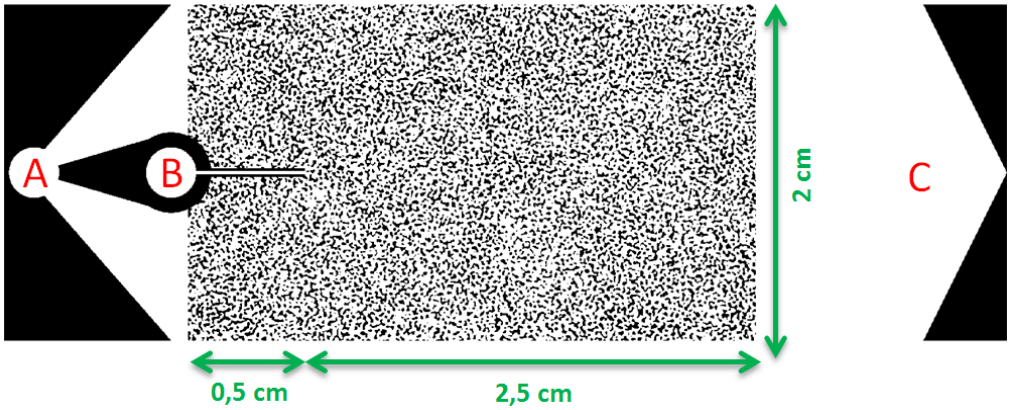


Figure 73 – Design du micromodéle
(A la piscine d'injection du fluide pousseur, B le canal par lequel l'huile est injectée et C la piscine de récupération)

L'épaisseur du micromodèle est de 215 μm, celle-ci est vérifiée après microfabrication à l'aide d'une analyse topographique réalisée à l'aide d'un profilomètre Le milieux poreux ainsi réalisé à donc un volume de pore $V_P = 9.10^{-8} m^3$ soit 90 µl.

4.1.2 La microfabrication

Une fois le masque du système microfluidique imprimé, on passe à l'étape de microfabrication qui a lieu dans une salle blanche afin de s'assurer qu'aucune poussière et aucun UV ne viennent contaminer les surfaces pendant la fabrication du micromodèle. Nous avons choisi de réaliser le micromodéle avec de la NOA81 (Bartolo 2008), il s'agit d'une colle ayant la particularité d'être imperméable à l'huile, ce qui n'est pas le cas du matériau généralement utilisé pour la microfabrication, le PDMS.

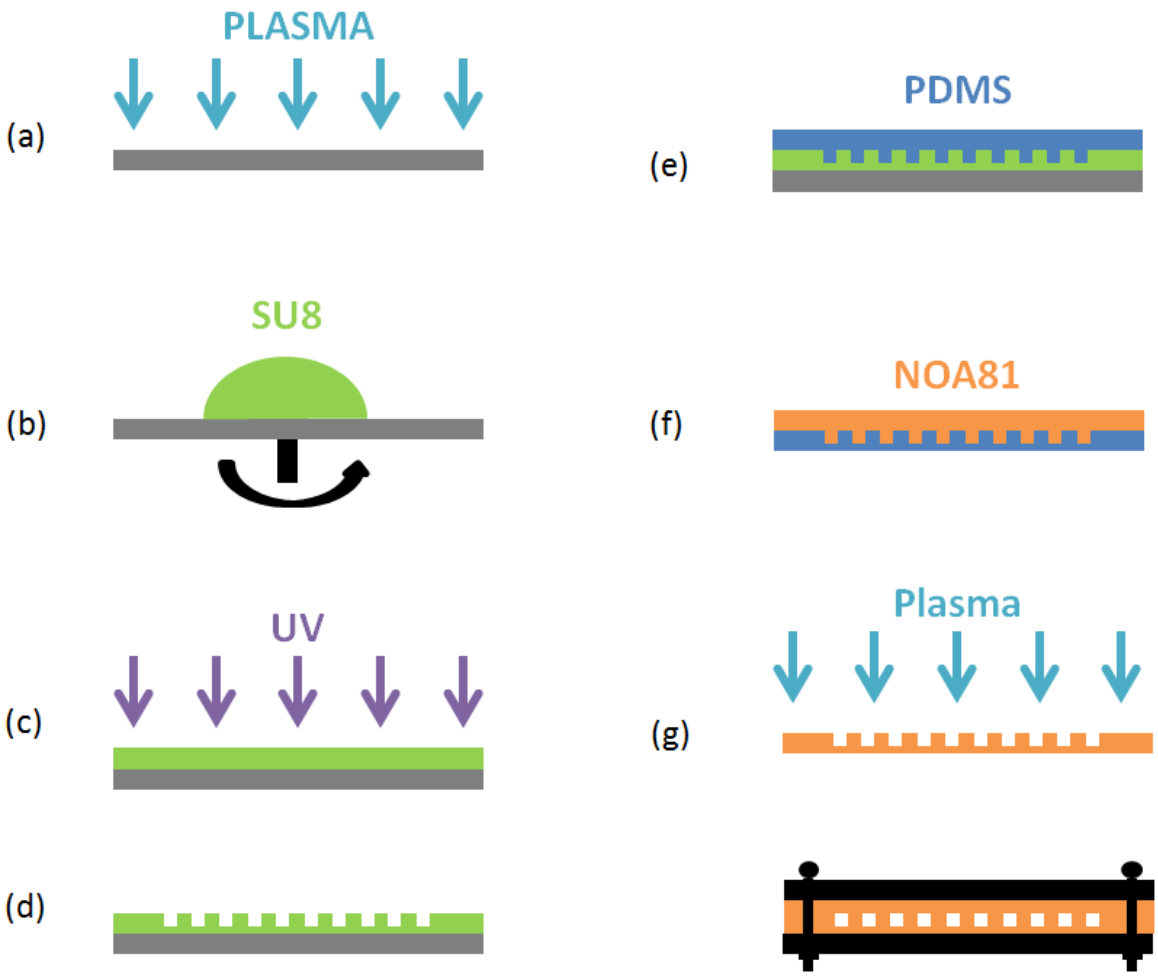


Figure 74 – Etapes de microfabrication

Préparation du masque

(a) Nettoyage du substrat : on nettoie le wafer en silicium avec de l'isopropanol et de l'acétone puis on expose ce dernier au plasma pendant une minute afin d'améliorer le dépôt de la résine

(b) Dépôt de la résine : une grosse goutte de résine photosensible négative, SU8 est déposée sur le wafer. On effectue un revêtement par centrifugation de la résine ou spin-coating à l'aide d'un disque rotatif. Les paramètres du spin-coating (vitesse et durée de rotation) et la viscosité de la résine vont déterminer l'épaisseur de la couche de résine déposée et donc de l'épaisseur du micromodèle avec une précision de l'ordre de la dizaine de micromètres. Ensuite le wafer avec son revêtement en résine est déposé sur plaque chauffante selon un régime de chauffage définissant aussi l'épaisseur souhaitée. Cette étape permet d'évaporer les solvants, on ne garde ainsi que les molécules réticulant aux UV.

(c) Insolation : la résine est insolée avec un aligneur UV pendant quelques secondes à travers le masque microfluidique. Sur le masque, les espaces creux (pores, canal et piscines) sont transparents alors que les piliers sont noirs. Ainsi, la résine se trouvant sur les zones transparentes du masque va réticuler. Le temps d'exposition ainsi que la puissance de la lampe UV sont fonction de l'épaisseur des canaux. On effectue ensuite une seconde cuisson.

(d) Développement : cette dernière étape permet d'enlever la résine non réticulée à l'aide du développeur PGMEA (Propylène Glycol Monométhyl Ether Acétate) et ainsi faire apparaitre les pores, le canal et les piscines d'injection et de récupération. On effectue ensuite un dernier chauffage à 120°C pendant 2h afin de renforcer la résine imprimée.

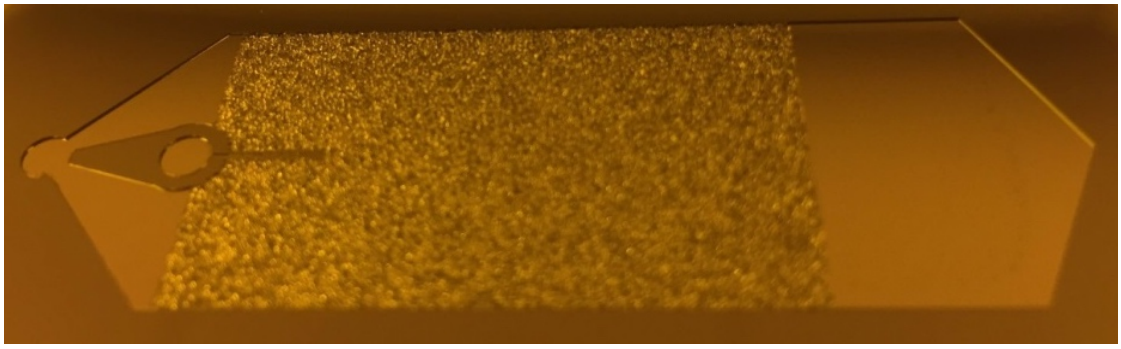


Figure 75 – Négatif du micromodèle sur le revêtement en résine SU8 du wafer après le développement

Préparation du moule en PDMS

(e) On coule du PDMS (Polydiméthylsiloxane) avec son agent réticulant sur le wafer sous vide. On passe le tout au four à 65°C pendant 1h30, ainsi le PDMS devient solide. On démoule ensuite le PDMS du négatif.

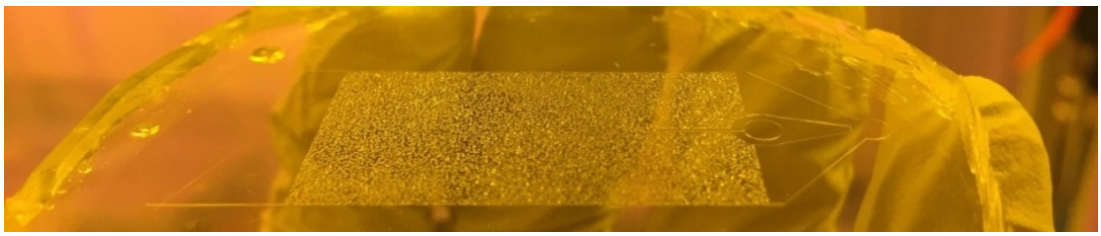


Figure 76 – Moule du micromodèle en PDMS

Fabrication du modèle en NOA

(f) On coule de la colle NOA81 sur le moule en PDMS en posant ensuite une plaque en plexiglass au-dessus, on effectue un traitement UV pendant 3 minutes.

(g) On obtient alors notre micro modèle en NOA81, il ne reste plus qu'à fixer une deuxième plaque en plexiglass recouverte elle aussi d'une fine couche de NOA81 au-dessus. Les deux plaques sont ensuite traitées au Plasma afin de rendre la NOA81 plus hydrophile (Levaché 2012). Une fois assemblé, il ne reste qu'à percer les trous d'injection.

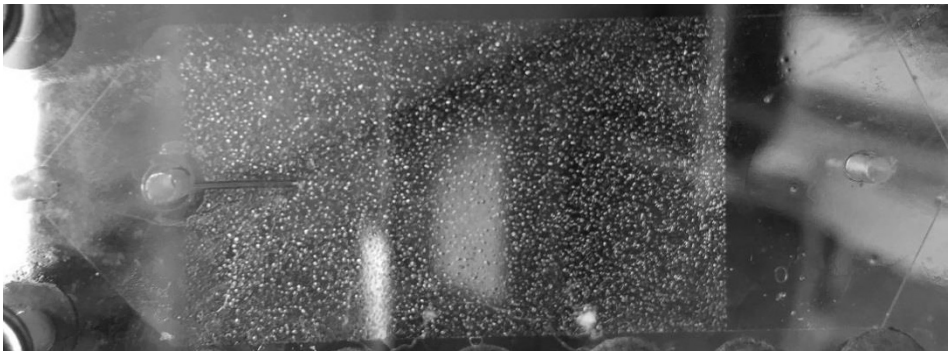


Figure 77 – Micromodèle final réalisé en colle NOA81

4.1.3 Caractérisation de la NOA81

Généralement, le PDMS est directement utilisé pour réaliser les micromodèles. Mais certaines propriétés de ce polymère n'étaient pas adéquates pour réaliser notre système. Les avantages de la NOA81 par rapport au PDMS sont les suivantes :

- La NOA81 est imperméable à l'huile.
- La NOA81 est rigide ce qui permet d'obtenir des systèmes non déformables.
- Cette colle offre une meilleure tenue dans le temps du traitement plasma, le caractère hydrophile apporté par le traitement plasma au PDMS ne dure généralement pas plus de 48h (Levaché 2012)

Mouillabilité de la NOA81

Afin de caractériser la mouillabilité de la NOA81 après le traitement plasma et l'assemblage des deux plaques, il est nécessaire de réaliser une expérience préliminaire.

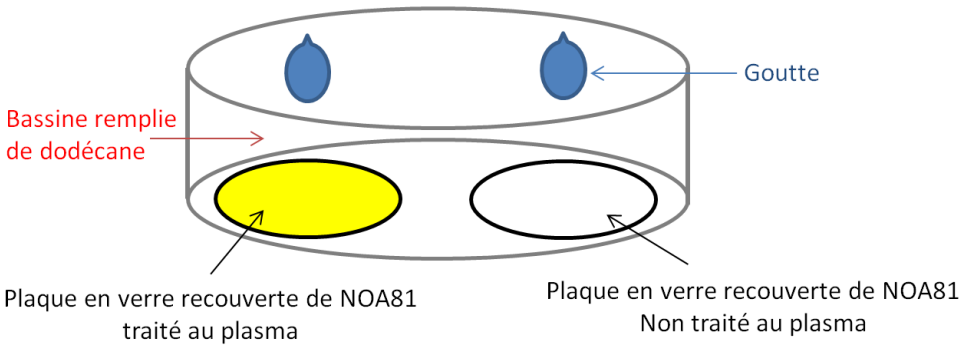


Figure 78 – Caractérisation du mouillage de la NOA81 traitée et non traitée au Plasma

Deux plaques de verre sont recouvertes d'une fine couche de NOA81, l'une subit un traitement au Plasma l'autre non. On les introduit dans un cristallisoir rempli de dodécane et on laisse tomber par gravité une goutte d'eau sur chacune des plaques. Un objectif est installé en sortie de cuve pour observer la forme des gouttes ainsi déposées.

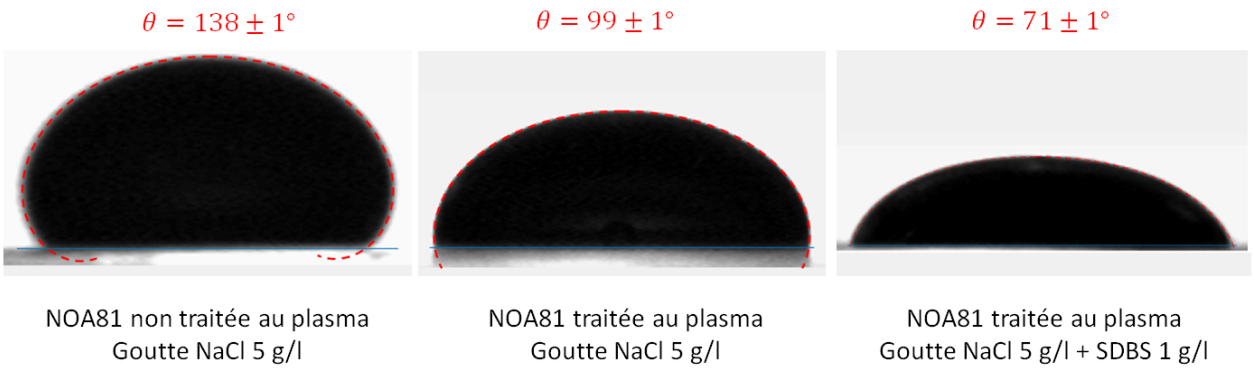


Figure 79 – Angles de contact NOA81/liquide

La Figure 79 montre les images des gouttes obtenues avec les solutions aqueuses utilisées. On constate qualitativement que l'angle de contact décroit significativement lorsque la surface de NOA81 est préalablement traitée au plasma. Pour la solution de SDBS utilisée, cet angle est encore plus petit. Le tensioactif permet une amélioration notable de la mouillabilité.

La mesure précise des angles de contact à partir de ces clichés n'est pas aisée, notamment pour les angles élevés, car la pente locale de la goutte varie fortement à proximité de la surface solide. Afin de limiter les incertitudes, nous avons tiré parti de la forme théorique d'équilibre de la goutte (en pointillé sur la Figure 79), ajustée sur l'image. L'intersection de ce profil avec la surface plane permet une mesure de l'angle de contact

La forme d'équilibre est plus traditionnellement utilisée par la méthode de la goutte pendante (ou plutôt ici, goutte posée). La loi de Laplace permet de relier la courbure de l'interface C avec l'altitude z : $\Delta\rho g z = \gamma(C - C_0)$, où γ est la tension interfaciale, $\Delta\rho$ la différence de masse volumique, et C_0la courbure en $z = 0$. Cette équation se résout numériquement – nous avons utilisé pour ce faire un code maison -, et permet d'obtenir les profils tracés en pointillés rouge sur la Figure 79, qui correspondent au meilleur ajustement obtenu, avec comme seul paramètre ajustable le paramètre $\sigma/\Delta\rho g$. On retrouve les mesures de tension interfaciale du chapitre 2, déterminées à la goutte tournante, à savoir pour le système dodécane-SDBS : $\gamma_{SDBS} = 0{,}45\ mN/m$ et à la goutte pendante pour le système dodécane-saumure : $\gamma_w = 40\ mN/m$.

L'intersection du profil des gouttes avec la surface permet d'obtenir des valeurs précises pour l'angle de contact. Nous trouvons un angle de contact de 138° pour le système dodécane saumure sur la surface NOA81 non traitée et de 99° sur la surface exposée au plasma. Pour le système dodécane-solution de SDBS, l'angle est de 71°.

4.1.4 Dispositif expérimental pour l'étude du transport de l'huile en micromodèle

Les solutions aqueuses utilisées

La saumure utilisée est la même que précédemment, il s'agit d'un mélange d'eau distillée et de chlorure de sodium à une concentration de 5g/l. Afin d'obtenir un contraste élevé entre l'huile et l'eau, les solutions aqueuses sont colorées à l'aide de colorant alimentaire de couleur bleue.

La solution tensioactive est aussi la même que précédemment à savoir un mélange d'eau distillée, NaCl 5g/l et SDBS 1g/l. Cette solution est elle aussi colorée en bleu. Il a été vérifié que la tension interfaciale entre l'huile et la solution tensioactive n'était pas modifiée par la présence de colorant.

Les huiles utilisées

L'huile de référence utilisée est aussi la même que précédemment, il s'agit du dodécane, de viscosité 1,34 cP à T=25°C.

Le dispositif expérimental

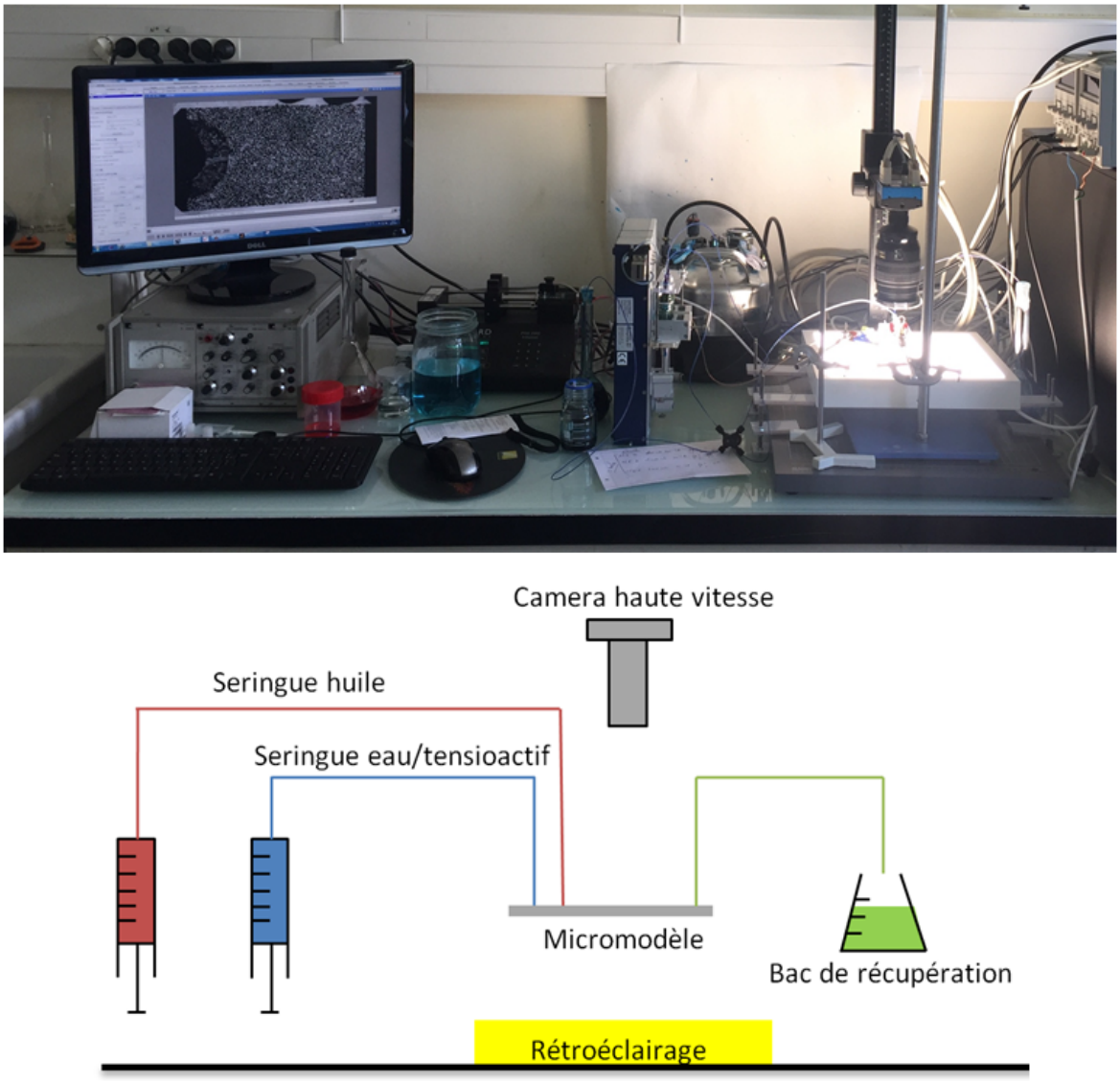


Figure 80 - Photo au laboratoire et schéma du montage microfluidique

Le micromodèle est dans un premier temps saturé sous vide en eau afin de s'assurer qu'aucune bulle d'air ne vienne perturber les expériences. Puis on branche les seringues d'huile et d'eau. Un pousse seringue (Nemesys) permet de contrôler les débits. On balaie

ensuite le réseau poreux du micromodèle avec la solution de saumure ou de tensioactif selon l'expérience.

La caméra à haute vitesse permet une acquisition d'images jusqu'à 700 images par seconde. Pour une image complète du micromodèle d'une dimension, 3x2cm, l'image en pixel obtenue est de 967x650. La résolution étant la taille réelle représentée par un pixel vaut donc 31µm. Cette résolution est suffisante pour étudier le transport de l'huile dans un tel système puisque la taille moyenne des pores est de 150µm, soit 7 fois plus que la résolution de l'image.

Le rétroéclairage est une plaque à LED suffisamment puissante pour pouvoir obtenir un bon contraste entre l'eau colorée en écoulement et les différentes huiles utilisées.

Perméabilité du micromodèle

On peut dans un premier temps se faire une idée de la valeur de la perméabilité en utilisant la formule de Hele-Shaw stipulant que dans un canal rectangulaire, les fluides s'écoulent selon un écoulement de Poiseuille permettant d'écrire une relation entre la perméabilité et l'épaisseur de la plaque responsable de la résistance hydraulique.

$$K \approx \frac{e^2}{12} \tag{4.2}$$

Le système microfluidique ayant une épaisseur de 215µm, la perméabilité dans une cellule de Hele-Shaw serait de $K = 3{,}9.10^{-9} m^2$.

On mesure la pression aux bornes du micromodèle en imposant plusieurs débits, les résultats ainsi obtenus sont représentés sur la Figure 81.

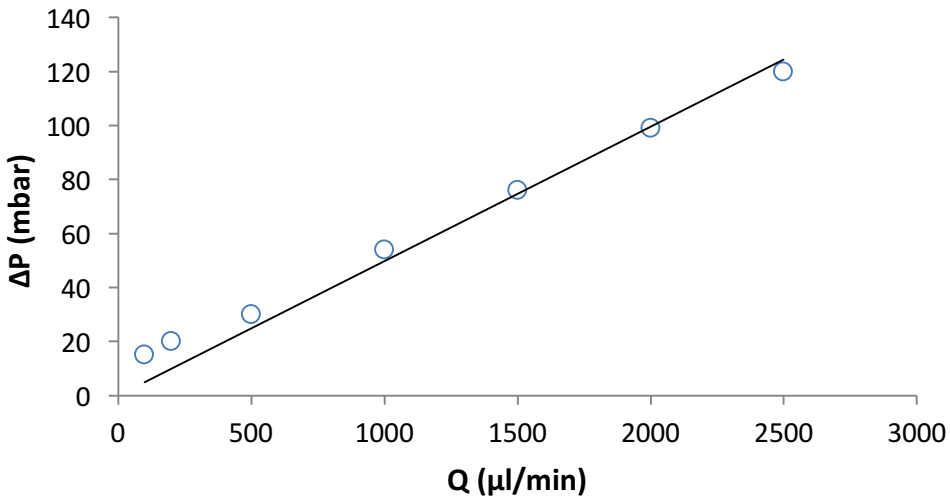


Figure 81 – Mesure de la perméabilité du micromodèle

On obtient bien une relation linéaire, compatible avec l'équation de Darcy. La perméabilité correspondante, donnée par

$$K = \frac{\mu_w Q}{pS} \tag{4.3}$$

La perméabilité mesurée vaut alors $K = 7{,}6.10^{-10} m^2$.

Cette valeur est 5 fois plus faible que la perméabilité d'une cellule de Hele-Shaw de même hauteur. Cette différence attendue s'explique simplement par la présence des obstacles (la porosité est de 70%). Dans une cellule de Hele-Shaw la porosité est de 100%, on s'attend donc dans notre cas à une perméabilité plus faible, ce qui est bien confirmé par la mesure.

4.1.5 Le traitement d'image

Afin de mieux visualiser le déplacement de la phase huile dans le milieu poreux, nous montrerons par la suite trois types d'image :

- *Images brutes* : Il s'agit des images brutes avec 256 niveaux de gris, le contraste a été ajusté au mieux pour observer l'huile. Les images brutes ne permettent pas bien de visualiser les phases car les piliers du micromodèle ont un niveau de gris très proche de l'huile.
- *Images de différences* : Afin de mieux distinguer la phase huile, nous soustrayons de l'image brute une image de référence, prise avant l'expérience, sans huile. Cette méthode est très robuste pour observer le déplacement de l'huile seule avec un très bon contraste mais ne permet pas de distinguer la différence entre les piliers et la phase aqueuse.
- *Images en fausses couleurs* : En additionnant l'image brute et l'image de référence, on obtient des images assez contrastées, présentant trois principaux niveaux de gris pour les trois phases en présence. On utilise ensuite de fausses couleurs afin de faire apparaitre l'huile en rouge, l'eau en bleu, et les piliers en noir. Même si ce type d'images permet de bien visualiser la répartition de toutes les phases, elles souffrent d'un léger défaut : les bords des piliers ont le même niveau de gris que la phase huile, ce qui fait qu'ils sont colorés en rouge malgré l'absence évidente d'huile.

4.1.6 Protocoles d'injection

Le microsystème est initialement totalement saturé en eau ou avec la formulation tensioactive selon les expériences. On réalise un premier cliché du milieu poreux en absence d'écoulement de la phase aqueuse saturante et avant d'injecter le ganglion d'huile. Ceci permet de disposer de l'image de référence qui sera soustraite à chaque image lors du transport du ganglion. L'huile est injectée à très bas débit dans le canal central à l'aide du pousse seringue. La taille du ganglion initial est difficilement contrôlable, les volumes d'huile des ganglions étant très faibles. Une solution était de générer un train de goutte pour contrôler la taille, mais ce protocole s'est révélé infaisable, les petites gouttes générées s'accumulant dans la piscine avant le canal d'injection central (préalablement rempli d'eau), jusqu'à un volume d'huile suffisant pour vaincre les forces capillaires une quantité d'huile non contrôlée et trop élevée est alors éjectée. C'est pourquoi nous avons simplement injecté un petit volume

d'huile, et stoppé l'injection quand nous voyons le ganglion dans le micromodèle. Ainsi à chaque nouvelle expérience, la taille de ce ganglion est donc variable.

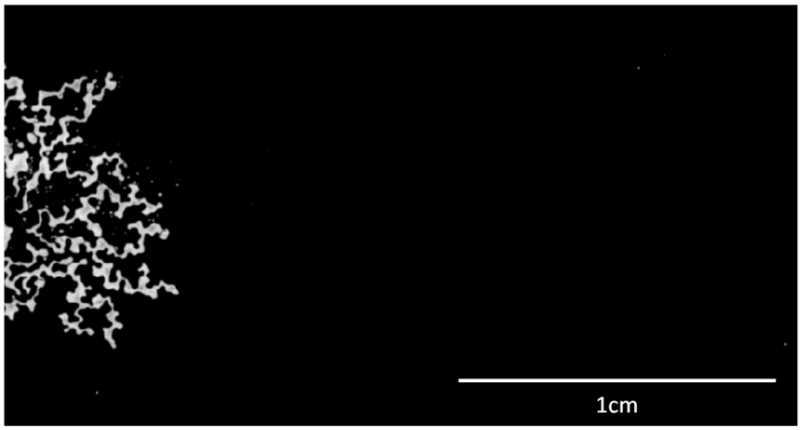


Figure 82 - Ganglion initial avant balayage (*image de différence)*

Une fois le ganglion généré, nous avons utilisé deux types de protocoles :

- *Une injection à débits croissants* : le débit d'eau est augmenté progressivement par pallier. Avant de changer de pallier, nous vérifions que l'on atteint un régime stationnaire, sans mouvement d'huile.
- *Une injection à débit fixé* : avant chaque débit, un nouveau ganglion est généré.

Les deux protocoles ne sont à priori pas équivalents, puisque pour l'injection à débit fixé, la taille du ganglion varie un peu à chaque débit. Pour l'injection à débit croissant, l'état initial avant un pallier donné dépend de la séquence d'injection, dans la mesure où, à des débits relativement faibles, nous observons une fragmentation et un repiégeage de l'huile.

Plutôt que de faire référence à des débits, nous utiliserons par la suite le nombre capillaire N_c, que nous définissons de la manière suivante :

$$N_c = \frac{\mu_w Q}{\gamma S} \tag{4.4}$$

Où γ est la tension interfaciale, $\mu_w$est la viscosité de la phase aqueuse, Q est le débit, S la section totale du micromodèle.

4.2 Observations qualitatives du déplacement d'un ganglion en micromodèle

Nous commençons par décrire qualitativement les expériences avant de les analyser plus quantitativement. Lors d'une injection à débits croissants, nous observons trois principaux régimes : pour des débits très faibles, aucun mouvement d'huile n'est détectable ; au-dessus d'un premier débit caractéristique (débit dépiégeant), nous observons une fragmentation progressive du ganglion initial, un déplacement de l'huile fragmentée qui se piège à nouveau dans le micromodèle ; enfin, au-dessus d'un second débit caractéristique (débit de production), l'huile sort progressivement du micromodèle. Ces différents régimes sont illustrés et détaillés ci-après.

4.2.1. Balayage à débit faible

Figure 83 – (*images de différences*) Observation de l'évolution du ganglion d'huile au cours du temps pour des débits d'injections faibles de la formulation tensioactive. *De gauche à droite, ganglion initial, Q=5µl/min ($Nc = 1{,}9.10^{-4}$) puis Q=10µl/min ($Nc = 3{,}8.10^{-4}$)*

Pour ces plus faibles débits testés, comme l'illustre la Figure 83, il n'y aucun mouvement du ganglion d'huile initial. Celui-ci reste piégé, les contraintes visqueuses associées à l'augmentation du nombre capillaire ne sont pas suffisantes pour dépiéger l'huile.

4.2.2. Balayage à débit dépiègeant

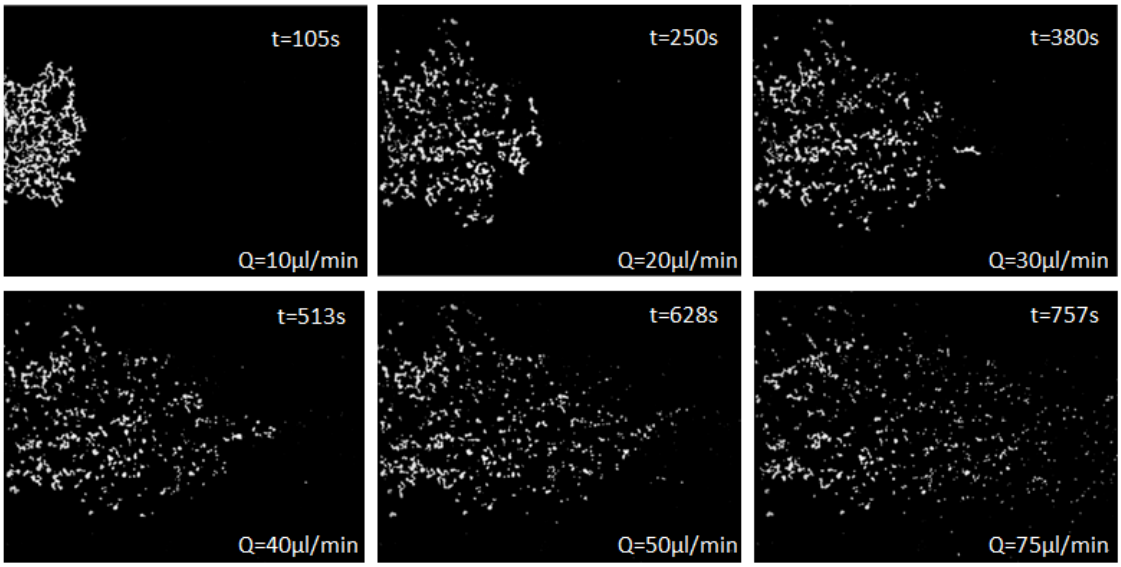


Figure 84 – (*Images de différences)* Balayage à des débits dépiégeants avec la formulation tensioactive.

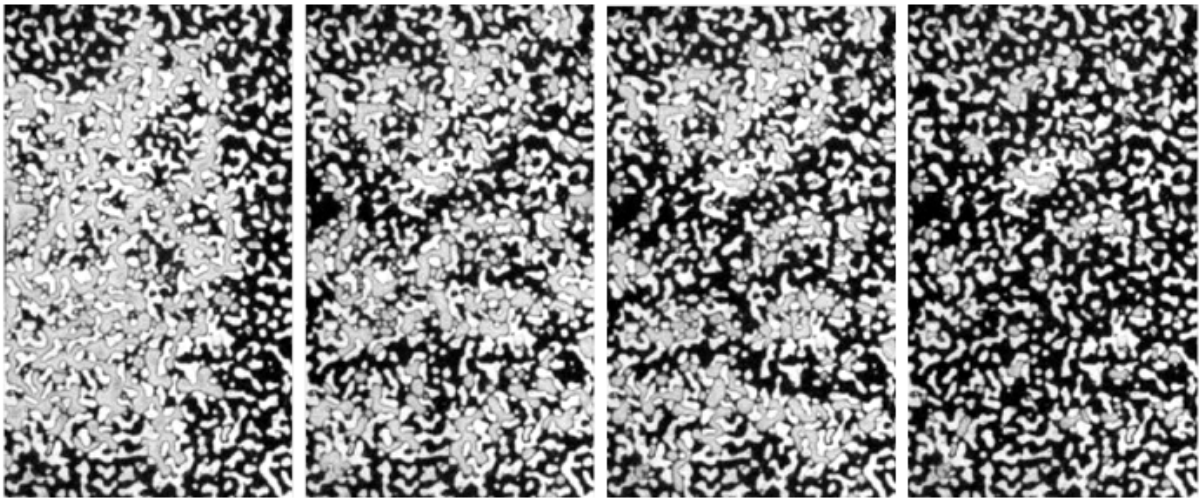


Figure 85 – *(Image brute)* Fragmentation du ganglion initial, lors d'une augmentation progressive du débit d'injection de la formulation tensioactive. L'huile et les piliers du micromodèle sont blancs tandis que l'eau apparait en noir.

La Figure 84 et la Figure 85 illustrent la fragmentation et le déplacement des résidus du ganglion pour des débits plus élevés. Pour le système huile/formulation tensioactive à partir d'un débit de 20µl/min correspondant à un capillaire $N_c = 7{,}5.10^{-4}$, on observe une

fragmentation du ganglion initial d'huile. Ce dernier se scinde en un ensemble de plus petits ganglions ou de gouttes qui se déplacent légèrement avant d'être piégés à nouveau. La taille de ces petits ganglions est de l'ordre d'une ou de quelques tailles de pore. En augmentant à nouveau le débit, nous observons une poursuite de la fragmentation de l'huile, qui est alors majoritairement sous forme de gouttes de l'ordre de la taille d'un pore. A chaque augmentation de débit, une partie de ces gouttes est mobilisée et se déplace dans le sens de l'écoulement avant d'être piégée à nouveau. Ce n'est pour un débit supérieur à 75µl/min, $N_c = 2{,}8.10^{-3}$ que de l'huile commence à être produite.

Le « repiégeage » des petits ganglions et des gouttelettes est illustré sur la Figure 86 et la Figure 87. Malgré des conditions de mouillage partiel (voir partie 5.1.3), ce piégeage ne semble pas associé au mouillage (pour le système huile, formulation tensioactive et surface en NOA avec traitement plasma) : en effet, la forme des gouttes et des interfaces ressemble à celle d'un système non-mouillant et on distingue même autour des gouttes un film d'eau. Le piégeage apparaît en revanche être associé à la géométrie locale du milieu ; les gouttes sont souvent piégées juste en amont d'une constriction située dans le sens de l'écoulement. Ce piégeage est également souvent collectif, comme l'illustre la Figure 87 : lorsqu'une goutte est piégée au niveau d'une construction, elle bloque les gouttes situées juste en amont. Ces observations indiquent donc la présence de sites de piégeage privilégié dans le milieu.

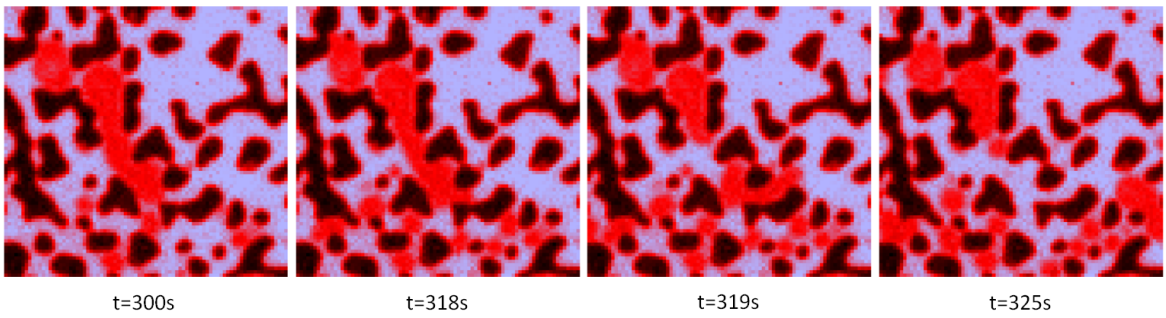


Figure 86 - *(Images en fausses couleurs)* Illustration du piégeage de ganglions (taille supérieure à la taille de pore). Sur cette série d'images, on effectue une augmentation de débit en passant de 150 à 200 µl/min.

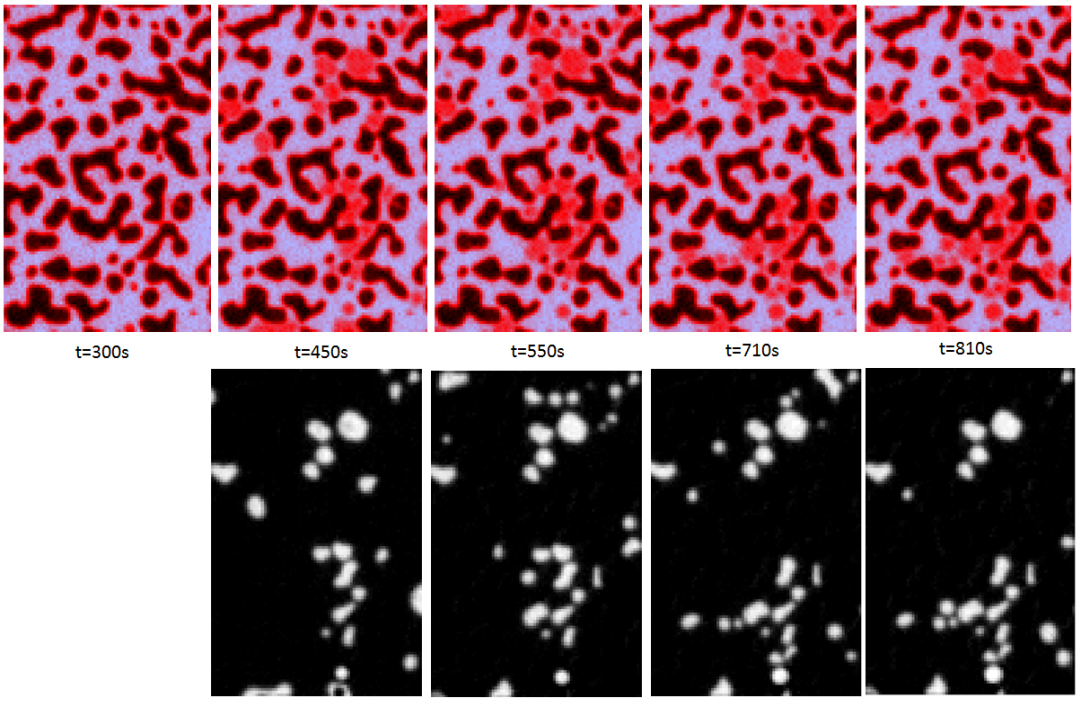


Figure 87 – *(haut : images en fausses couleurs, bas : images de différence)*
Visualisation de sites de piégeage de gouttes. Images successives obtenues avec un débit passant de 150 à 200 µl/min pour le système huile/tensioactif.

Nous n'avons jamais observé de coalescence des ganglions ou des gouttes d'huile, contrairement aux résultats obtenus par (Yiotis 2013) en simulation Lattice-Boltzmann. Pour les solutions de SDBS, la présence d'un surfactant limite à priori fortement la coalescence. Pour la saumure seule, ce résultat est plus surprenant, mais pourrait être lié aux colorants utilisés, lesquels ont également des propriétés tensio-actives.

Ces observations sont valables pour les deux systèmes étudiés, la taille du ganglion initiale et quel que soit le protocole utilisé. Nous tirons de ces expériences deux conséquences importantes concernant la mobilisation et la mobilité d'une phase huile déconnectée :

- Seuls les ganglions dont la taille est proche de celle du pore se déplacent : les ganglions plus gros sont fragmentés avant d'être déplacés par la phase aqueuse.
- La fragmentation et la mobilisation se produisent pour des nombre capillaires inférieurs à ceux permettant la production d'huile. En effet, nous observons pour cette gamme de nombre capillaire un repiégeage systématique des ganglions et gouttes mobilisés. Ce piégeage semble être associé à la géométrie locale du milieu (constrictions dans le sens de l'écoulement).

4.2.3 Balayage à un débit de production

En augmentant encore le débit, on observe que certaines gouttes piégées sont mobilisées et sortent du dispositif. Ceci est illustré sur la Figure 88. Pour des N_c supérieurs à $N_c = 2{,}8.10^{-3}$ pour le système huile /tensioactif, non seulement le piégeage décrit dans le paragraphe précédent se produit moins fréquemment, mais encore plus nombreuses sont les gouttes mobilisées lors de l'augmentation du débit.

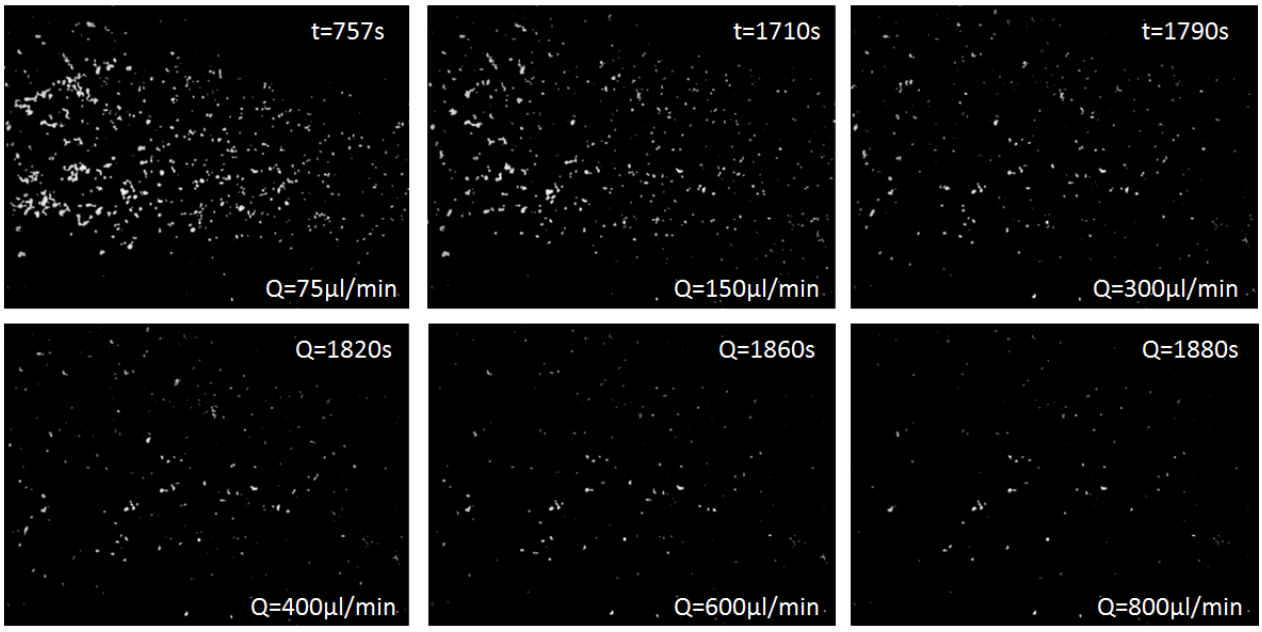


Figure 88 - *(images de différences)* Balayage avec la formulation tensioactive à des débits croissants par paliers.

Certains sites de piégeage sont relativement robustes, car même pour un nombre capillaire de $N_c = 3{,}0.10^{-2}$, on constate que quelques dizaines de gouttes sont encore bloquées dans le milieu.

En zoomant sur la sortie, on peut obtenir de manière plus quantitative la taille des gouttes produites. D'après la Figure 89, les gouttes d'huile produites ont un diamètre moyen de l'ordre d'une centaine de micron. Ceci confirme donc les mécanismes préalablement identifiés. Un ganglion initial de grande taille se fragmente progressivement en gouttes et en ganglions de petites tailles. Seuls sont produits ceux qui ont un diamètre de l'ordre de grandeur de la taille de pore.

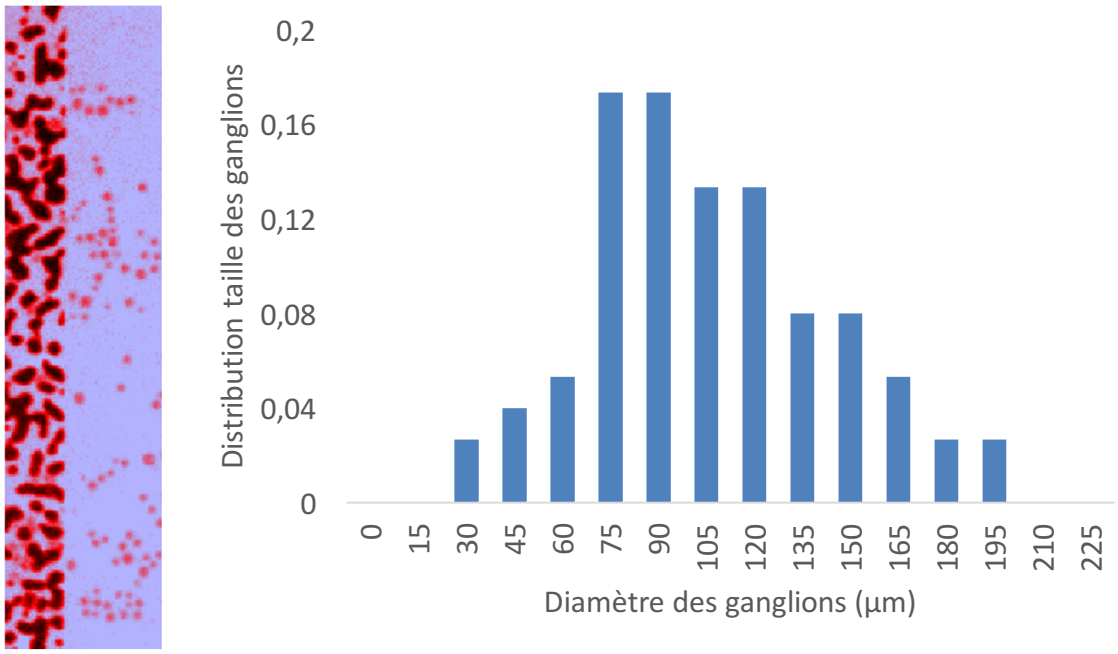


Figure 89 – Gauche : *(image en fausses couleurs)* Image obtenue en sortie pour un débit de 150 µl/min, avec le système huile/tensioactif. Droite : densité de probabilité du diamètre des gouttes produites. On obtient une moyenne de 100 µm avec un écart-type de .50 µm.

4.3 Etude quantitative des phénomènes observés en micromodèle

4.3.1. Huile résiduelle

A l'instar des courbes de désaturation capillaires (CDC) réalisées sur des échantillons de roche, nous nous intéressons dans cette partie à la quantité d'huile restante après un balayage à un débit donné. Ceci nous permet de comparer quantitativement les deux systèmes et les deux protocoles utilisés (voir partie 4.1.5) : système avec ou sans SDBS, protocole d'injection à débit fixe, ou par pallier de débits croissants.

En revanche, contrairement aux CDC, la valeur absolue de la saturation en huile n'a ici pas de profonde signification puisqu'elle est arbitrairement faible due à l'état initial considéré : un ganglion unique de taille variable. Afin de pouvoir comparer les expériences entre elles, nous avons pris parti de normaliser systématiquement la valeur de la saturation en huile par la valeur initiale.

La Figure 90 montre l'évolution de la quantité d'huile au cours du temps, pour des expériences par injection à débit fixe. On constate que quel que soit le débit utilisé, la production d'huile s'effectue progressivement en environ un volume de pore. La cinétique associée aux mécanismes de fragmentation et de mobilisation de l'huile semble donc limitante pour le transport. La vitesse de l'huile semble être au contraire gouvernée par le débit de la phase aqueuse. Nous reviendrons par la suite sur cet aspect.

La valeur stationnaire obtenue après plus d'un volume de pores est en revanche fortement dépendante du débit. La Figure 91 montre son évolution en fonction du nombre capillaire, pour les deux systèmes et les deux protocoles utilisés. On constate que le protocole utilisé influe peu sur la quantité d'huile résiduelle, mais que cette dernière dépend du système utilisé. Dans les deux cas, la désaturation est assez abrupte et se produit sur une demi-décade en nombre capillaire. Cette production d'huile est significative pour $N_c \sim 8\times10^{-4}$ pour le système sans tensioactif, et pour $N_c \sim 5\times10^{-3}$ pour la solution de SDBS.

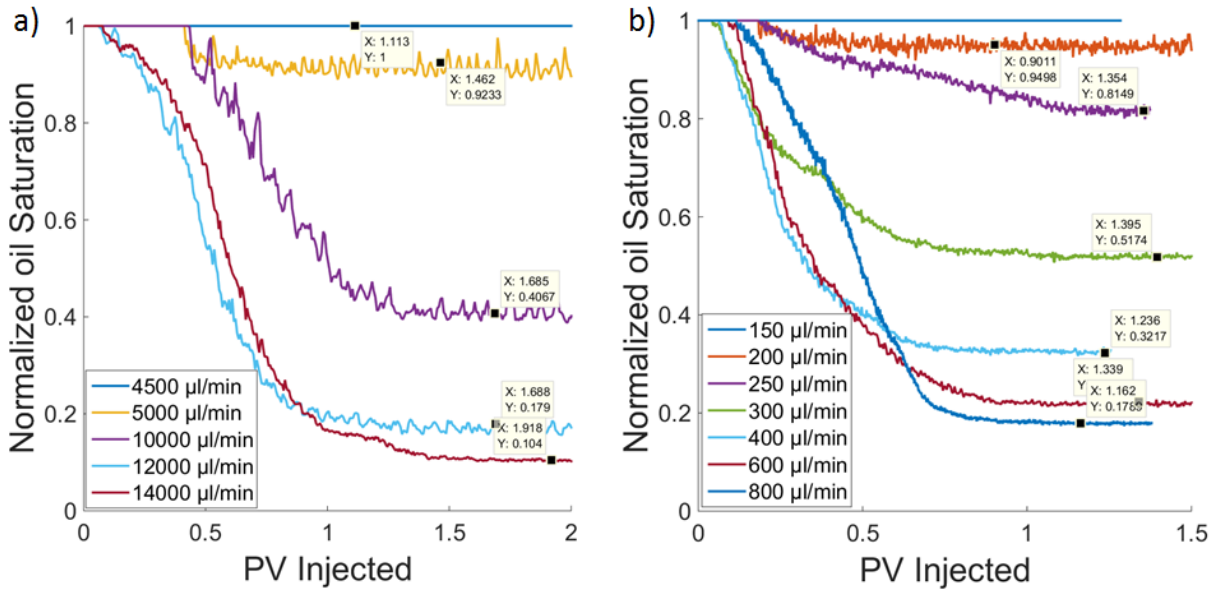


Figure 90 – Evolution de la saturation en huile normalisée lors de l'injection de saumure (gauche), de la formulation tensioactive (droite), par le protocole à débit fixe.

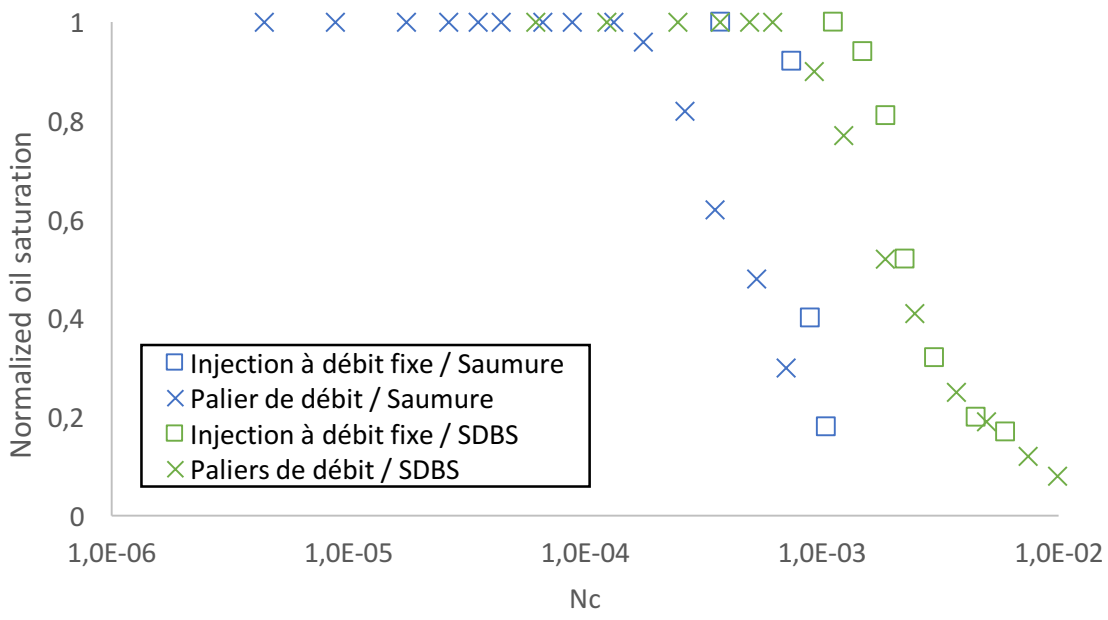


Figure 91 –Evolution de la valeur stationnaire de la quantité d'huile normalisée, en fonction du nombre capillaire, pour les deux protocoles et pour les deux fluides de balayage.

Comme nous l'avons souligné dans la partie concernant la caractérisation des fluides dans les expériences, les angles de contacts sont différents, le micromodèle traité au plasma est plus mouillable à la formulation tensioactive qu'a la saumure en présence de dodécane. Le nombre capillaire tel que défini jusqu'à présent ne prend pas en compte cette différence. En mouillage partiel, la présence d'un angle de contact diminue les pressions capillaires, qui sont proportionnelles à $\gamma \cos\theta$. Nous introduisons donc un nouveau nombre capillaire, défini par :

$$N_{c_\theta} = \frac{\mu V}{\gamma |\cos\theta|} \tag{4.5}$$

et retraçons sur la Figure 92 les mêmes résultats que sur la Figure 91, mais en fonction de N_{c_θ}. On constate cette fois que les courbes des deux systèmes se superposent grossièrement, ce qui semble indiquer que la différence observée Figure 91 entre les deux systèmes est bien due à la différence de leurs propriétés de mouillage. La désaturation se produit pour $N_{c_\theta} \sim 2\times 10^{-2}$. Cette conclusion semble toutefois contradictoire avec les observations directes, selon lesquelles les gouttes d'huile ne semblent pas entrer en contact avec les parois des piliers. Il serait utile de procéder à des observations au microscope, pour vérifier in situ les angles de contact.

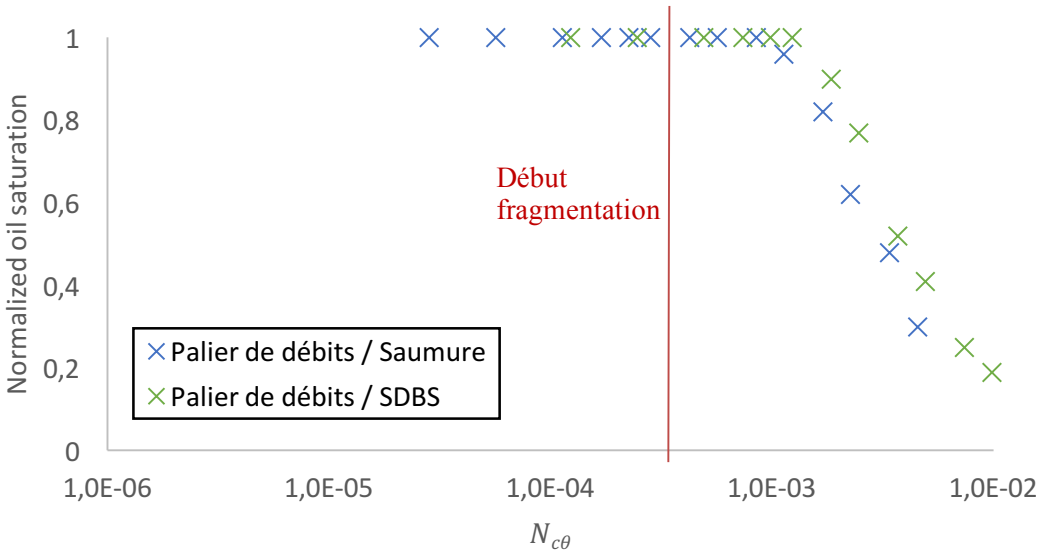


Figure 92 - Valeur stationnaire de la quantité d'huile normalisée, en fonction du nombre capillaire modifié, normalisé par $|\cos\theta|$

4.3.2 Fragmentation du ganglion initial

Afin de caractériser le phénomène de fragmentation décrit précédemment, nous avons déterminé par analyse d'images l'évolution de la taille moyenne des ganglions piégés, en régime stationnaire. Cette opération est effectuée sur les images de différences, après binarisation de l'image et détection d'objets isolés. La mesure est obtenue en effectuant la moyenne pondérée par les surfaces de la taille, cette dernière étant elle-même définie comme la racine carrée de la surface d'un ganglion.

La taille moyenne est tracée Figure 92 en fonction du nombre capillaire modifié (prenant en compte la valeur de l'angle de mouillage). On observe que la taille moyenne diminue Pour $N_{c_\theta} > 10^{-3}$, c'est-à-dire pour des nombres capillaires modifiés bien inférieurs aux nombres capillaires à ceux pour lesquels on observe une production d'huile ($N_{c_\theta} > 10^{-2}$). Pour cette quantité également, les deux systèmes (avec et sans tensio-actif), les données se superposent, ce qui renforce la conclusion de la partie précédente : c'est le nombre capillaire modifié qui contrôle les phénomènes observés.

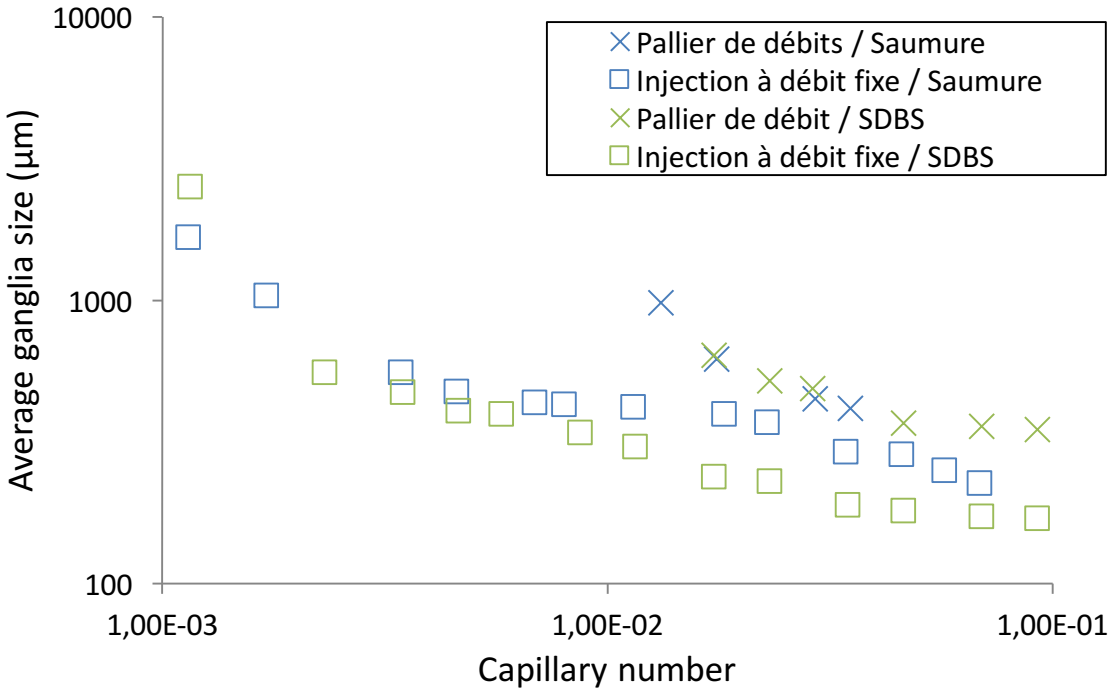


Figure 93 - Etude de la fragmentation : taille moyenne des ganglions en fonction du nombre capillaire

Lorsque le nombre capillaire atteint 10^{-2}, l'huile commence à être produite, alors la taille moyenne des ganglions est comprise entre 300 et 600µm. Les gouttes produites sont quant à elles en moyenne un peu plus petites (voir partie 4.3.2). On trouve ainsi que, à grand nombre capillaire, les gouttes les plus petites sont plus facilement dépiégées que les plus grosses.

4.3.3 Etude de la vitesse des gouttes mobiles

Le déplacement global de l'huile est donc régi par les mécanismes de fragmentation puis de dépiégeage/piégeage. L'enchaînement de ces mécanismes conduit à un déplacement global de l'huile et, à partir d'un certain nombre capillaire seuil, à la production de l'huile en sortie du micromodèle. Nous allons maintenant tenter d'évaluer la vitesse moyenne de déplacement de l'huile en nous intéressant d'une part aux vitesses locales des ganglions et à l'évolution globale de la saturation dans le milieu. Deux méthodes sont mises en œuvre : le suivi de gouttes et l'évolution de la moyenne de la saturation en huile sur différentes tranches du micromodèle.

Le suivi de particules

Cette méthode repose sur l'identification des ganglions d'huile et de la détermination de leur trajectoire. Nous travaillons sur les images de différences, qui permettent un bon contraste entre l'huile et les autres phases. Le gouttes apparaissent en blanc, comme sur la Figure 94. On utilise un algorithme de détection des maximums, en fixant un seuil relativement élevé pour éviter les faux positifs. Les plus petites gouttes sont ainsi écartées de l'analyse. Les gouttes sont ainsi détectées sur 500 images consécutives acquises à 200Hz, et leur trajectoire est déterminée grâce à un algorithme couramment utilisé (Crocker 1996). Nous nous focalisons dans cette partie sur une expérience réalisée avec la formulation tensioactive à un débit de 200 µl/min.

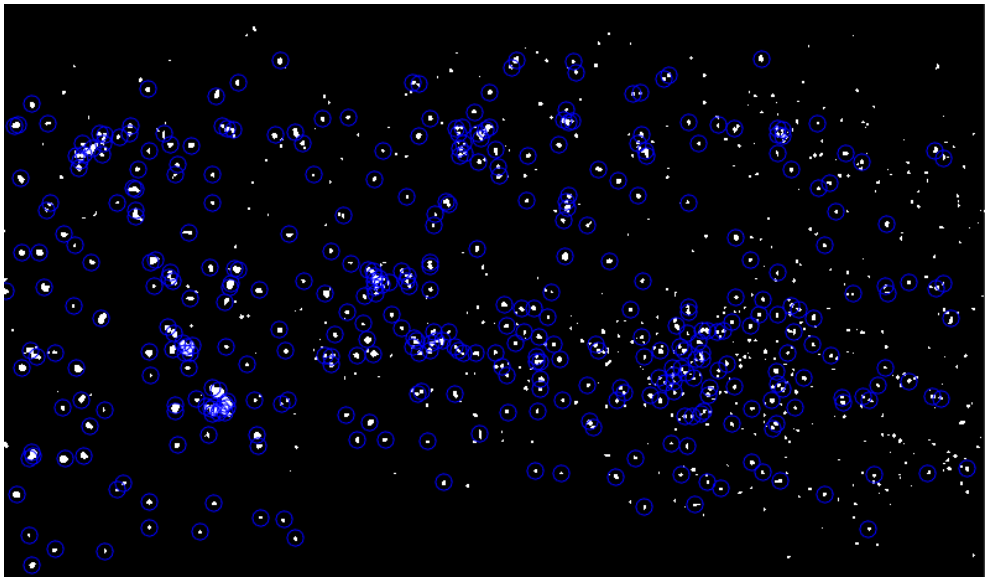


Figure 94 – *(Image de différence)* Identification des gouttes par détection de maxima. Les centre des gouttes détectées est représenté par des cercles bleus.

On peut dès lors représenter la trajectoire de toute les gouttes suivies, sur la Figure 95. L'ensemble des trajectoires obtenues forment une cartographie du réseau de pores accessibles, cohérent avec la structure du milieu. On s'aperçoit d'ores et déjà que certaines gouttes mobiles parcourent des distances importantes et alors que d'autres sont piégées dès le début et restent immobiles.

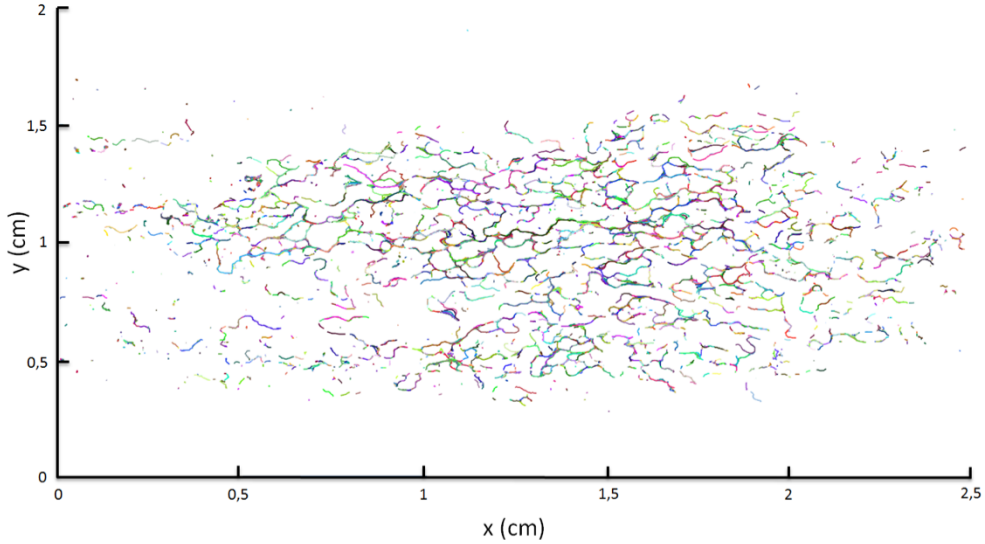


Figure 95 – Visualisation des trajectoires des gouttes d'huile au cours de l'injection de tensioactif. *Chaque couleur correspond à la trajectoire d'une goutte.*

La Figure 96 montre la distance parcourue dans le sens de l'écoulement en fonction du temps des gouttes détectées. On constate que les vitesses individuelles instantanées (qui correspondent aux pentes de ces courbes sont assez hétérogènes. Pour la plupart des gouttes, on obtient des courbes composées de segments de droite, avec pour certains segments des pentes nulles. Ceci montre que beaucoup de gouttes sont tantôt mobiles, tantôt piégées. Le dépiégeage n'est donc pas instantané : certaines gouttes sont dépiégées après quelques secondes, d'autres immédiatement après le début de l'expérience. De même, des gouttes sont repiégés continuement.

Afin de quantifier ces vitesses, nous avons déterminé la vitesse instantanée de chaque particule, par différence de position entre deux images successives. Au préalable, les trajectoires ont été lissées sur quelques images afin de limiter le bruit de la mesure. La Figure 97 montre les densités de probabilités obtenues des composantes de la vitesses (suivant la direction de l'écoulement, notée x, et suivant la direction transverse, y). Pour les deux composantes, on observe un pic intense en zéro, qui correspond naturellement aux gouttes (temporairement) piégées. En zoomant, on constate que la densité de probabilités des vitesses transverses est bien symétrique, alors que pour les vitesses dans le sens d'écoulement, la distribution met en évidence une asymétrie, avec une bosse assez large centrée sur quelques mm/s.

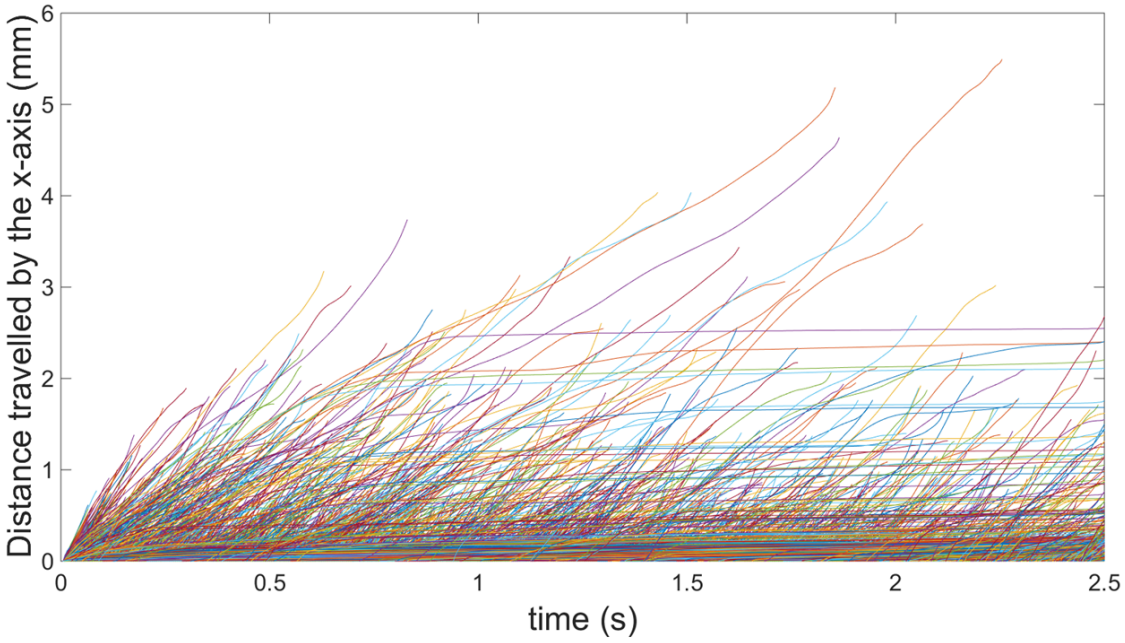


Figure 96 – Distance parcourue dans le sens de l'écoulement par les ganglions d'huile au cours du temps.

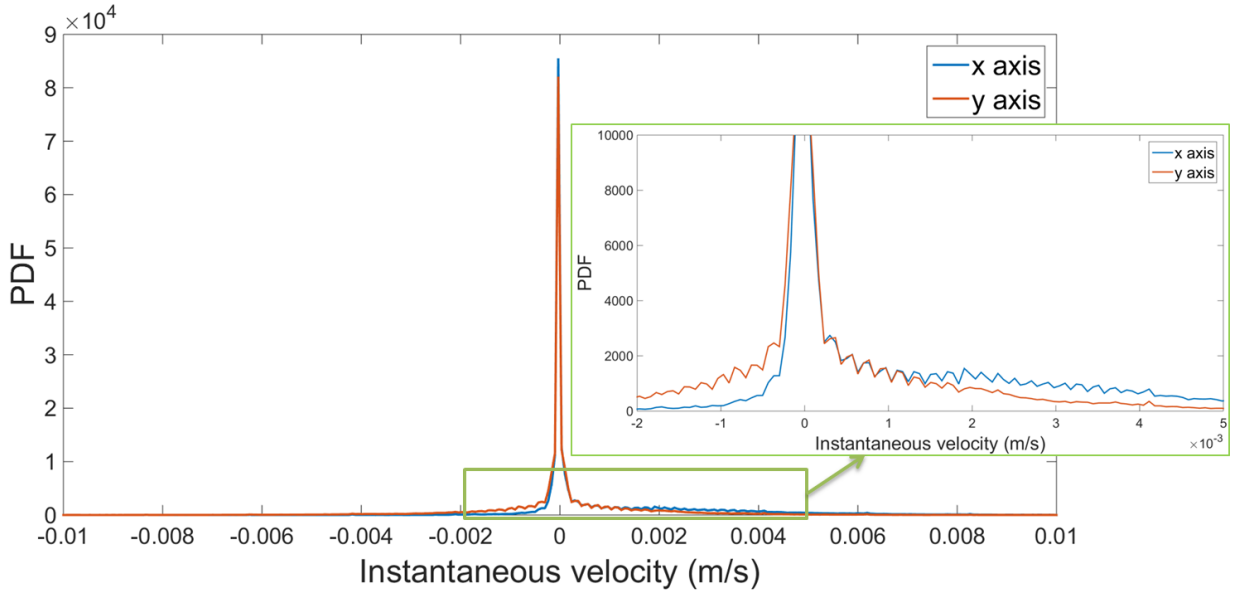


Figure 97 – Distribution des vitesses instantanées selon les axes x et y

Nous cherchons à déterminer la vitesse moyenne des gouttes mobiles. Pour ce faire, nous proposons un ajustement des densités de probabilités de vitesses $p(v)$ par un double Gaussienne :

$$p(v) = a_0 e^{-\left(\frac{v}{\Delta_0}\right)^2} + a_1 e^{-\left(\frac{v-v_1}{\Delta_1}\right)^2}, \tag{4.6}$$

Où la première Gaussienne est centrée sur l'origine. La Figure 98 montre les résultats obtenus pour les composantes suivant x et y de la vitesse.

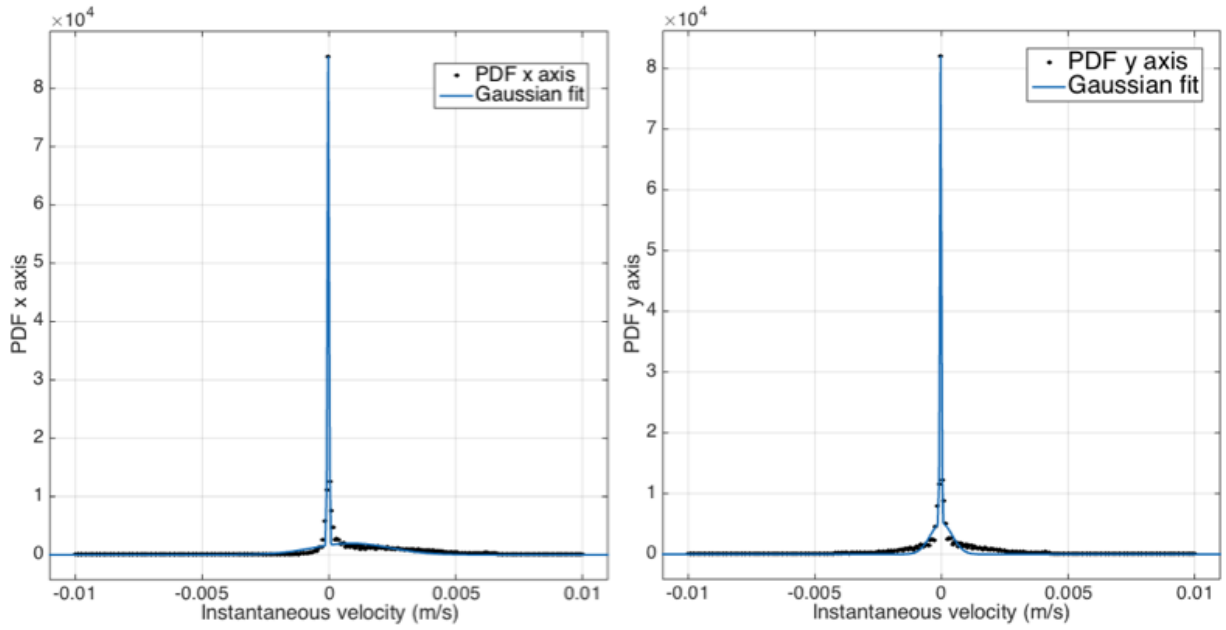


Figure 98 – Meilleurs ajustements (en bleu) par une double Gaussienne obtenus pour les distributions de vitesses suivant x (à gauche) et y (à droite). Les valeurs des coefficients des ajustements sont reportées Figure 99.

	X-AXIS	**Y-AXIS**
$\boldsymbol{a_0}$	117800	112700
$\boldsymbol{\Delta_0}$	0,00007721	0,00007818
$\boldsymbol{a_1}$	5568	6647
$\boldsymbol{v_1}$	0.0007831	0,00005957
$\boldsymbol{\Delta_1}$	0.0013	0.001089

Figure 99 – Coefficients des meilleurs ajustements par une double Gaussienne.

On obtient pour les gouttes mobiles une vitesse moyenne de $v_x = 7{,}8.10^{-4} m/s$, et, dans la direction transverse de $v_y = 5.9\times10^{-5} m/s$. On a bien une vitesse transverse négligeable. En revanche les écarts-types de ces vitesses sont comparables et sont de l'ordre de 9×10^{-4}m/s, soit du même ordre de grandeur que v_x. Ceci correspond bien à ce qui est attendu pour des vitesses locales en milieu poreux. En intégrant les deux pics, on trouve que les gouttes mobiles représentent 45% de la population des gouttes (que ce soit dans les directions x ou y). Ce dernier résultat n'est cependant pas très pertinent dans la mesure où nous avons fait le choix de ne pas détecter les gouttes les plus petites, d'une part, et que cette fraction dépend par ailleurs du temps, d'autre part. En effet, en régime stationnaire, il n'y a plus que des gouttes piégées.

Il est intéressant de comparer la valeur de la vitesse moyenne des gouttes mobiles, $7{,}8.10^{-4}\ m/s$, à la vitesse interstitielle, $v_i = \frac{Q}{\phi S}$. Pour un débit de 200µl/min, cette dernière

vaut $2{,}1.10^{-3}\ m/s$, soit près de trois fois plus que la vitesse des gouttes. Les deux valeurs restent du même ordre de grandeur : la vitesse des gouttes est donc relativement proche de la vitesse interstitielle, tout en étant inférieure. Toutefois, il semble prématuré de conclure sur cette différence, étant donné le grand écart type mesuré. La valeur moyenne peut également être biaisée puisque les plus petites gouttes ont été écartées de l'analyse.

Cette analyse par suivi de particules est relativement lourde à mettre en place, et ne permet pas de véritablement conclure sur le rapport entre la vitesse des gouttes mobiles et la vitesse interstitielle. Néanmoins, elle permet de pouvoir conclure solidement sur les phénomènes de piégeage et de repiégeage : ceux-ci interviennent continuement : les gouttes se dépiegent et se repiégent à tout instant.

Déplacement du front de saturation

Nous avons utilisé de manière plus systématique un autre type d'analyse, qui permet également de déterminer la vitesse de la phase huile, sans le biais évoqué par analyse de trajectoires. Il s'agit de mesurer en fonction du temps une saturation locale en huile, dans des tranches transverses à l'écoulement (représentées sur la Figure 96), afin d'obtenir une estimation de $s(x,t)$. Les tranches considérées sont situées en aval, dans une zone où la saturation est initialement nulle.

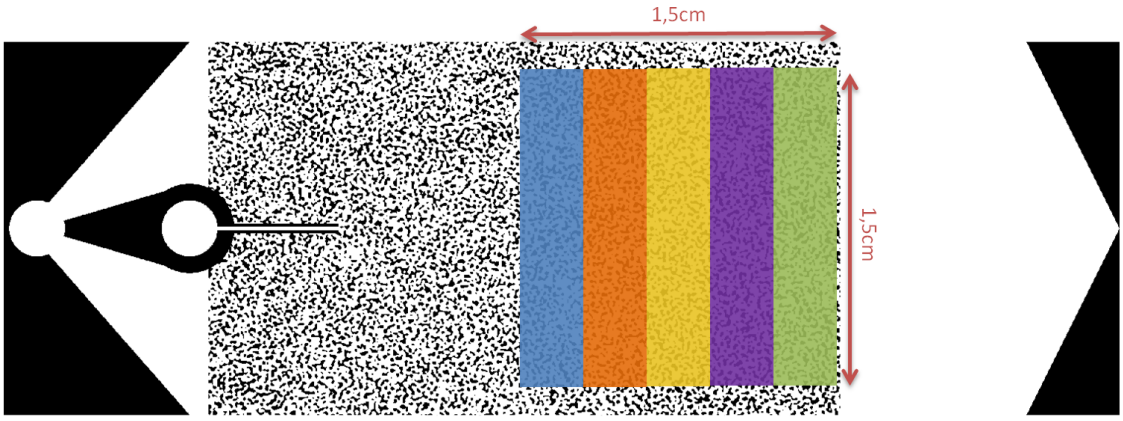


Figure 100 – découpage en cinq zones du micromodèle

La Figure 101 montre l'évolution temporelle de la saturation dans chacune des 5 tranches considérées, pour différents débits. La saturation, initialement nulle, augmente, passe par un maximum et diminue jusqu'à atteindre une valeur asymptotique. Cette dernière correspond à de l'huile résiduelle, qui a été repiégée localement. On constate que le

repiégeage est plus important à faible débit, et qu'il diminue suivant x. Nous reviendrons sur cette observation dans la partie suivante.

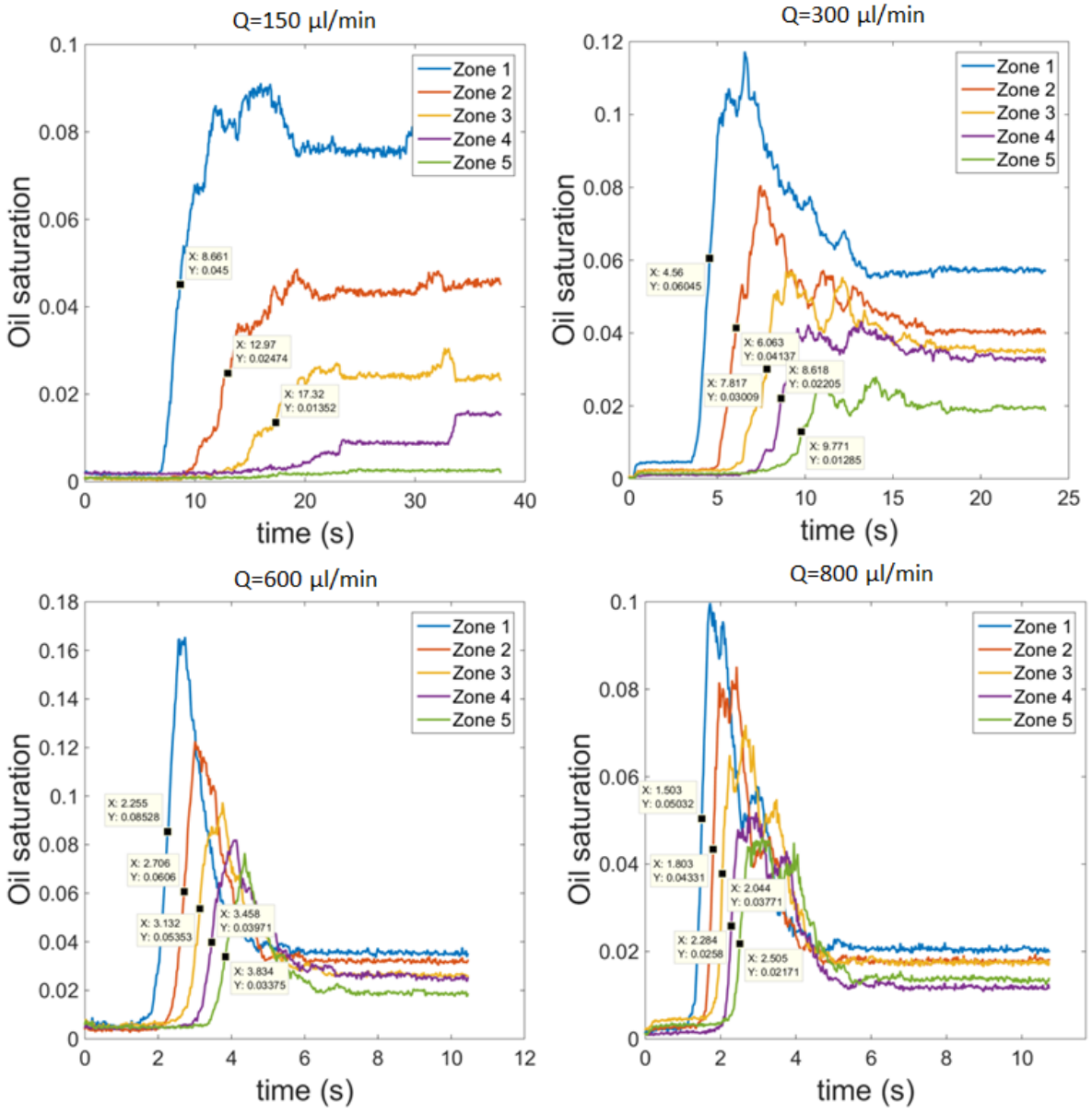


Figure 101 – Evolution de la saturation en huile dans 5 zones définis du micromodèle au cours de l'injection de la formulation tensioactive à différent débits.

Le décalage du front de saturation entre les différentes zones permet d'obtenir une estimation de la vitesse de déplacement de la phase huile mobile. Nous avons déterminé les temps de passage du front de saturation au niveau des points d'inflexions des courbes de saturation, tel qu'illustré sur la Figure 101. Ils sont ensuite tracés en fonction de la distance. On obtient des variations linéaires, qui nous permettent de définir la vitesse du front de saturation, qui correspond en première approximation à la vitesse de l'huile mobile.

Les résultats sont montrés sur la Figure 102, où la vitesse du front est tracée en fonction de la vitesse interstitielle. Les points expérimentaux s'alignent à l'incertitude près sur la première bissectrice, et ce pour les deux systèmes étudiés. Ceci montre donc que la vitesse du front de saturation est égale à la vitesse interstitielle. L'huile mobile se déplace à la vitesse de la phase aqueuse.

Ce résultat est cohérent avec le fait que la phase huile est dispersée sous forme de gouttes de l'ordre de la taille du pore. Ces gouttelettes d'huile se déplacent par entraînement visqueux, et on s'attend dès lors à ce que leur vitesse soit de l'ordre de la vitesse moyenne de l'écoulement.

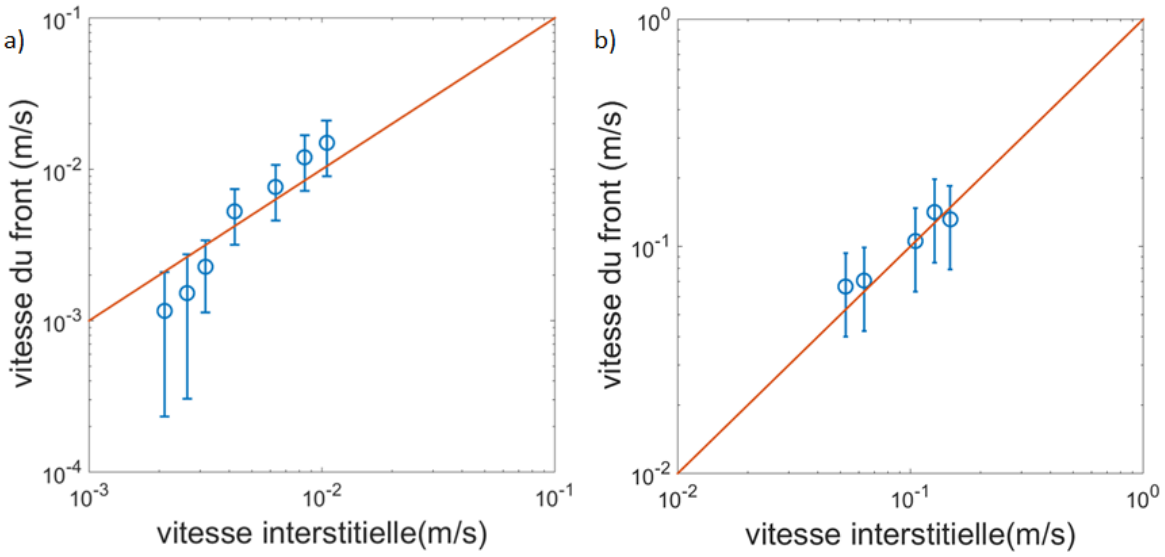


Figure 102 – Comparaison des vitesses interstitielles et des vitesses mesurées du front de saturation à partir des points d'inflexion des courbes de saturation. *A gauche, il s'agit des vitesses de front pour le système huile/tensioactif à droite, les vitesses sont celles du système huile/saumure.* Les barres d'erreurs correspondent à aux écarts de vitesses mesurées avec les différents temps de passage du front par rapport à la moyenne des vitesses obtenues. En rouge est tracée la première bissectrice.

On peut remarquer sur la Figure 102, pour la formulation de tensioactif, que pour les débits les plus faibles, la vitesse du front est systématiquement plus faible que la vitesse interstitielle, alors qu'elle est plus élevée à grand débit. Même s'il est délicat de conclure étant donné les incertitudes, ce résultat pourrait s'interpréter assez simplement. A bas débit, le phénomène de repiégeage est important, et la vitesse du front mesurée n'est pas exactement la vitesse des gouttes mobiles. A haut débit, peu de gouttes se repiégent, et il est possible que les gouttes empruntent majoritairement les chemins où la vitesse interstitielle est plus élevée que

la moyenne. Il serait intéressant d'étendre cette mesure et de la répéter afin de pouvoir conclure sur ce point. En première approximation cependant, nous avons bien une vitesse de l'huile du même ordre que celle de la phase aqueuse.

4.4 Modélisation du piégeage des gouttes d'huile

4.4.1 Mise en place d'un modèle à partir des observations expérimentales

Nos observations montrent que, même fragmentée en gouttes de l'ordre de la taille des pores, l'huile mobilisée se repiége en aval. Ce phénomène de repiégeage apparait essentiel à des nombres capillaires intermédiaires, pour lesquels il n'y a pas encore de production d'huile. Dans cette partie, nous cherchons à analyser plus quantitativement l'évolution temporelle des courbes de saturation locales, présentées Figure 101.

Il n'est pas possible d'utiliser de manière directe les données, car la quantité d'huile repiégée dépend de manière évidente de la quantité d'huile mobilisée, qui n'est pas contrôlée directement dans les expériences. Ainsi, en aval, la saturation résiduelle en huile est plus faible car la plupart des gouttes ont été piégées en amont. Afin d'exploiter les données, nous proposons dans ce qui suit un modèle *ad hoc* permettant de décrire quantitativement nos observations.

L'idée principale de la modélisation consiste à considérer séparément l'huile piégée de l'huile mobile, et à écrire un échange entre ces deux pseudo-phases. La saturation en huile peut se décomposer en partie piégée s_p, et une partie mobile s_m, telle que $s_o = s_p + s_m$. L'évolution temporelle de l'huile piégée résulte d'un équilibre entre un taux de piégeage f_p et un taux de dépiégeage f_d, que l'on peut écrire sous la forme générique

$$\frac{\partial s_p}{\partial t} = f_p + f_d. \tag{4.7}$$

Ces taux de piégeage et de dépiégeage sont à priori fonction des saturations s_p et s_m et du nombre capillaire. Dans cette partie, nous ne nous intéressons qu'au répiégeage de l'huile mobilisée en amont, puisque dans les expériences présentées Figure 101., la saturation en huile est initialement nulle, et nous n'observons pas d'évènements de piégeage suivis d'un dépiégeage. On prendra donc $f_d = 0$ dans ce qui suit.

Nos observations détaillées (voire partie 4.2.2) semblent indiquer que les gouttes ont tendance à être piégée dans des pores de géométrie particulière, présentant une constriction dans le sens de l'écoulement. Ceci nous amène à introduire la notion de sites de piégeage, qui constituent une fraction seulement du volume poreux, notée $s_{p_{max}}$. Cette densité de sites de piégeage est à priori fonction du nombre capillaire, et on s'attend, à l'instar des courbes de désaturation capillaire, qu'elle diminue lorsque le nombre capillaire augmente.

Nous proposons que le taux de piégeage f_p résulte de la fréquence d'arrivée sur un site de piégeage d'une goutte d'huile. f_d doit alors être proportionnel à la fréquence de passage des gouttes, c'est-à-dire au flux d'huile v_o, ainsi qu'à la quantité de sites de piégeage disponibles, $(s_{p_{max}} - s_p)$. Lorsque l'huile est dispersée sous forme de gouttes, nous avons vu qu'elles se déplaçaient avec la vitesse de la phase continue, $v_T = Q/S$, pour un écoulement unidirectionnel. Le flux d'huile est alors donné par $v_o = s_m v_T$. Nous proposons ainsi de modéliser le taux de piégeage par :

$$f_p = k_p s_m v_T \left(s_{p_{max}} - s_p\right) = k_p v_T (s_o - s_p)\left(s_{p_{max}} - s_p\right) \tag{4.8}$$

La constante k_p, homogène à l'inverse d'une longueur sera discutée par la suite.

Afin de clore le problème, la conservation de la phase huile s'écrit simplement pour un écoulement unidirectionnel à débit constant comme

$$\phi \frac{\partial s_o}{\partial t} + v_T \frac{\partial s_m}{\partial x} = 0 \tag{4.9}$$

Les équation (4.7), (4.8) et (4.9), avec l'hypothèse $f_d = 0$, forment un système fermé, que l'on peut résoudre assez simplement, et qui peut à priori décrire les expériences réalisées. Ces dernières correspondent à une situation obtenue avec pour condition initiale $s_o(t = 0) = s_p(t = 0) = 0$, et pour conditions aux limites en $x = 0$, un flux imposé d'huile. Ce dernier n'est pas connu à priori. En prenant à des fins purement illustratives pour ce flux imposé d'huile une gaussienne ad hoc, on obtient les prédictions tracées sur la Figure 103. Pour la résolution, nous utilisons la routine *pdepe* de Matlab. Simple à utiliser, cette fonction est prévue pour résoudre des EDP du second ordre en espace, paraboliques ou elliptiques. C'est pourquoi nous avons dû ajouter à l'équation de transport de l'huile (4.9) un terme du second ordre en espace (terme diffusif), qui permet la résolution, mais qui n'influe pas sur le résultat

à condition que le coefficient de diffusion correspondant soit suffisamment faible. La condition aux limites choisie à droite est une sortie libre (flux diffusif nul).

4.4.2 Validation de la modélisation du piégeage de l'huile

Le modèle reproduit qualitativement les observations expérimentales de la Figure 101 : la saturation en huile à une position donnée passe par un maximum puis décroit jusqu'à une valeur asymptotique constante. Dans la direction de l'écoulement, cette valeur décroit, de même que le maximum. La valeur asymptotique correspond au piégeage résiduel. Le modèle précédent permet d'interpréter simplement cette décroissance : en supposant comme nous l'avons fait que le taux de piégeage était proportionnel au flux d'huile, il y a moins de piégeage en aval car le l'huile a été piégée en amont. Le flux cumulé d'huile est donc plus faible en aval et limite la quantité repiégée. Ceci suppose bien sûr que les saturations utilisées sont inférieures à la quantité de sites de piégeage, $s_{p_{max}}$.

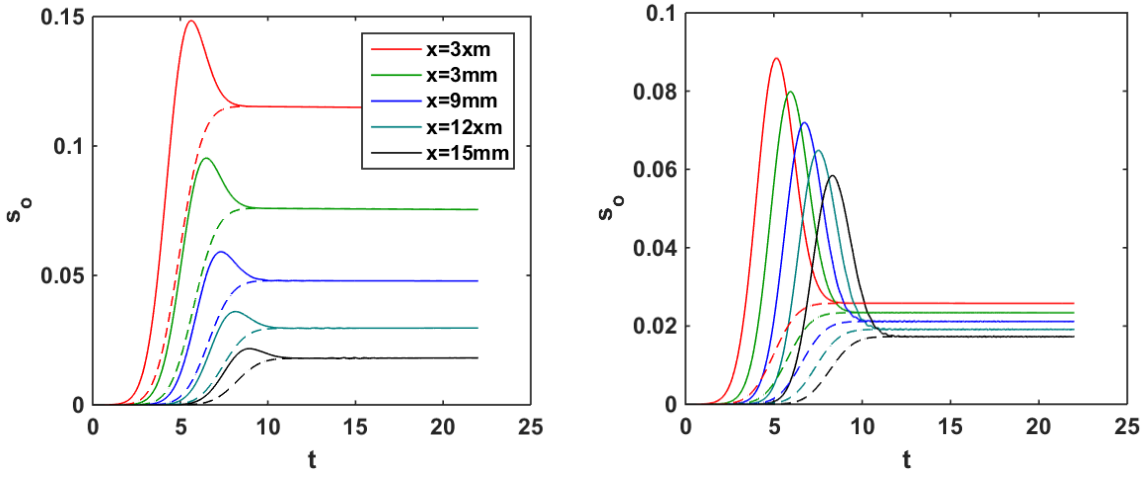


Figure 103 : Evolution temporelle de la saturation, à différentes positions spatiales, suite à l'injection d'huile sous la forme d'une Gaussienne. La courbe en pointillés correspond à la l'huile piégée (s_p). Pour cette exemple, $v_T = 3$mm/s, $s_{p_{max}} = 0.5$, $k_p = 500m^{-1}$ (à gauche) et $100m^{-1}$(à droite).

Afin de pouvoir comparer le modèle aux résultats expérimentaux, nous avons besoin de la connaissance de l'évolution temporelle du flux injecté. Nous n'y avons pas accès expérimentalement. Nous avons donc pris parti d'utiliser la courbe $s(t)$ mesurée la plus en amont comme condition en $x = 0$.

Dans la pratique, cette courbe est ajustée par un polynôme de degré élevé (20 dans la pratique), ce qui permet d'avoir une expression analytique. La résolution du système d'EDP permet ensuite de prédire l'évolution de la saturation pour $x > 0$. En optimisant les paramètres $s_{p_{max}}$, k_p et v_T, on obtient un accord très correct avec les données expérimentales, comme le montre la Figure 104 et la Figure 105 .

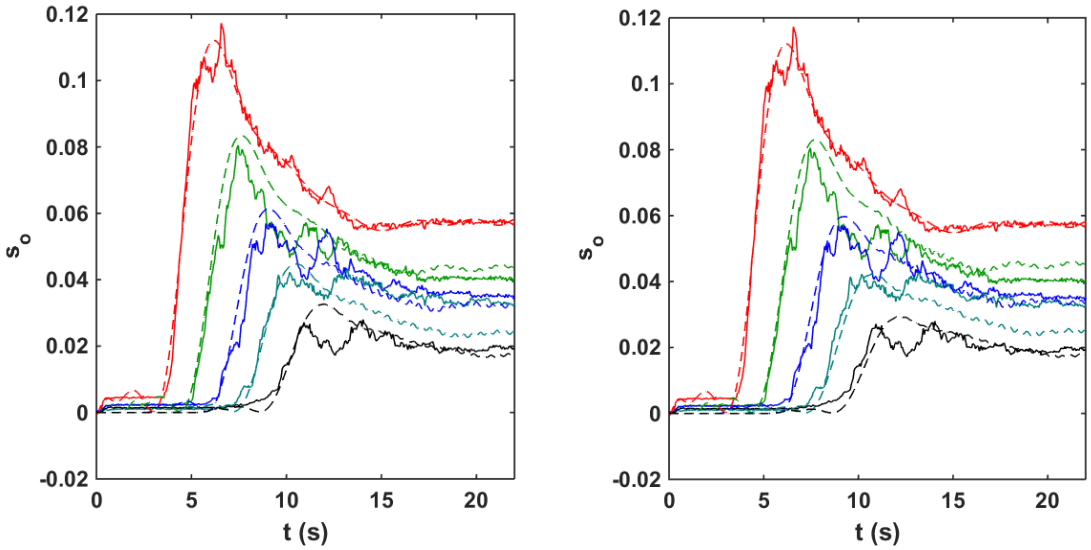


Figure 104 : Ajustements de la saturation mesurée expérimentalement, en utilisant la première valeur comme condition aux limites en $x = 0$. Les données expérimentales ont été obtenue avec le système de tensioactif, et un débit de $300 \mu L/min$. Les paramètres du modèle sont :
$v_T = 2.15\ mm/s$, $k_p = 300 m^{-1}$, $s_{p_{max}} = 0.36$ (à gauche);
$v_T = 2.15\ mm/s$, $k_p = 10^3 m^{-1}$, $s_{p_{max}} = 0.13$ (à droite).

Ce modèle semble donc capable de décrire quantitativement les résultats expérimentaux. Toutefois, comme le montre la Figure 104, il n'est pas possible d'estimer indépendamment, sur une seule expérience, les paramètres du modèle k_p et $s_{p_{max}}$. En effet, dans la limite des faibles saturations, le taux de repiégeage est proportionnel au produit de ces deux paramètres. Ce n'est que lorsque la saturation de l'huile piégée se rapproche de $s_{p_{max}}$ que l'on peut faire la différence entre les deux. De plus, les fluctuations que nous observons sur les données expérimentales - dues essentiellement à la taille finie des zones dans lesquelles sont effectuées la détermination de la saturation – empêchent d'affiner l'ajustement. Il serait nécessaire de multiplier les expériences avec des saturations plus variées afin de pouvoir contraindre la modélisation.

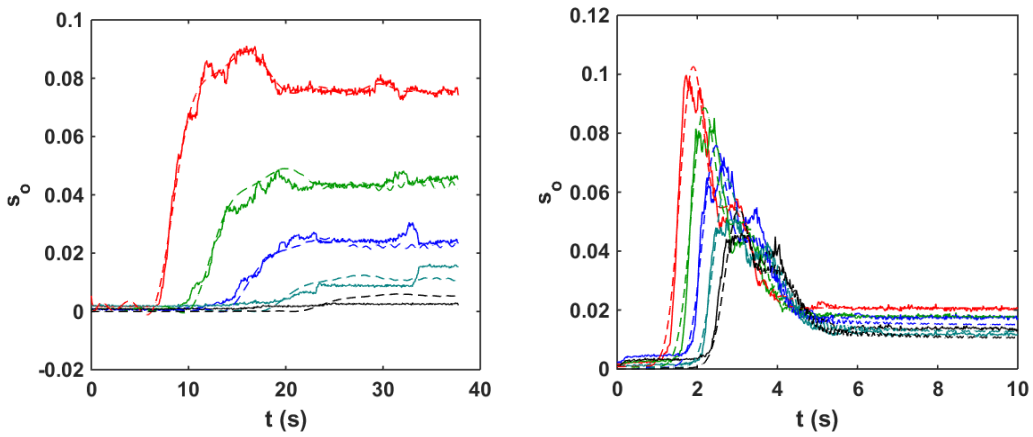


Figure 105. Exemples d'ajustements réalisés avec le modèle de piégeage. Dans les deux cas, $k_p = 10^3\ m^{-1}$. A gauche, pour un débit de 150 $\mu L/min$, et à droite de 800 $\mu L/min$. Les meilleurs ajustements sont obtenus avec $s_{p_{max}} = 0.24$, $v_T = 8{\times}10^{-4}\ m/s$ (gauche) ; $s_{p_{max}} = 0.071$, $v_T = 1.12{\times}10^{-2}\ m/s$ (droite).

Nous avons pris parti d'ajuster les données existantes en fixant le paramètre k_p et en laissant libre le paramètre $s_{p_{max}}$. Deux séries d'ajustements ont été réalisées, une avec $k_p = 10^3\ m^{-1}$ et une avec $k_p = 300\ m^{-1}$. Dans les deux séries, le modèle est en bon accord avec les données expérimentales. La Figure 106 montre l'évolution du produit $k_p s_{p_{max}}$ en fonction du nombre capillaire. On constate que cette grandeur, directement proportionnelle au taux de piégeage diminue avec le nombre capillaire. La transition entre un piégeage fort (où l'ensemble des gouttes se repiégent rapidement) et un piégeage faible se situe vers $Ca_\theta \simeq 2{\times}10^{-2}$, ce qui correspond bien à la valeur pour laquelle on observe de l'huile sortir du micromodèle.

Même si le modèle s'avère incapable de déterminer indépendamment les valeurs de k_p et de $s_{p_{max}}$, les valeurs de $s_{p_{max}}$ semblent plus réalistes avec $k_p = 10^3\ m^{-1}$, puisqu'elles se situent entre 0.3 pour les débits les plus faibles et 0.05 pour les débits les plus forts. Avec une valeur plus faible de k_p, les valeurs de $s_{p_{max}}$ ne semblent pas très réalistes. En effet, comme le montre la Figure 106, le produit $k_p s_{p_{max}}$ reste du même ordre de grandeur en faisant varier k_p.

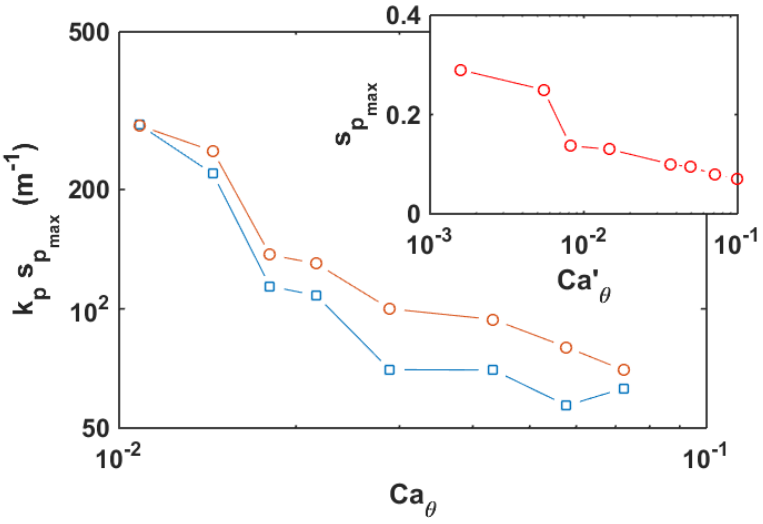


Figure 106 : Evolution du paramètre $k_p s_{p_{max}}$, obtenu par ajustement des profils temporels de saturation, en fonction du nombre capillaire modifié Ca_θ pour prendre en compte les propriétés de mouillage. Les carrés correspondent aux valeurs obtenues avec $k_p = 300\ m^{-1}$, les cercles à celles obtenues avec $k_p = 10^3\ m^{-1}$. En insert, valeur de $s_{p_{max}}$ (pour $k_p = 10^3\ m^{-1}$) en fonction du nombre capillaire Ca'_θ calculé à partir de la vitesse de déplacement observée de l'huile, à savoir le paramètre v_T du modèle, laissé libre pendant l'ajustement.

On retient donc que ce modèle est à même de décrire quantitativement le phénomène de repiégeage observé. L'ordre de grandeur de k_p déterminé correspond à une taille caractéristique de 1mm, soit une dizaine de fois la taille de pores. Les valeurs de la densité de sites de piégeage $s_{p_{max}}$ correspondent à une courbe de désaturation capillaire. Toutefois, soulignons qu'il est difficile d'exclure le fait que k_p soit indépendant du nombre capillaire. En effet, une interprétation possible de cette grandeur pourrait être la distance caractéristique qui sépare deux sites de piégeage. k_d et $s_{p_{max}}$ seraient alors reliés.

Pour aller plus loin et valider ce modèle, il faudrait réaliser des expériences où le flux d'huile injecté varie significativement à un débit donné, ainsi que des expériences où la saturation initiale n'est pas nulle. Afin d'étendre le modèle, il conviendrait de modéliser également le taux de dépiégeage. Ce dernier pourrait être de la forme $f_d = k_d v_T s_p$, où k_d serait une fonction du nombre capillaire.

Cette partie montre qu'il est possible de reproduire les résultats expérimentaux à partir de la description de la dynamique d'échange entre l'huile piégée et l'huile mobile pilotée par des mécanismes de piégeage/dépiégeage.

Plus généralement, ce type d'approche pourrait permettre d'estimer les évolutions de saturation dans un milieu poreux à faible saturation en huile lorsque l'huile est sous forme ganglions en reprenant l'idée que le déplacement d'huile dans ces conditions est déterminé par la compétition entre dépiégeage et piégeage avec des taux qui dépendent du nombre capillaire.

Ce qu'il faut retenir…

Nous avons dans ce chapitre réalisé l'injection de ganglions d'huile dans un micromodèle avec une mouillabilité préférentielle à l'eau. Lors du balayage du ganglion avec la formulation tensioactive à plusieurs paliers de débit, nous avons mis en évidence :

- $N_c < N_{ccritique}$: Aucun mouvement de l'huile,
- $N_c = N_{ccritique1}$: le ganglion initial se fragmente directement en ganglions plus petits qui se repiégent. Pas de production d'huile observée en sortie. La taille des ganglions diminue avec le capillaire.
- $N_c > N_{ccritique2}$: Seuls les ganglions de diamètre inferieur à la taille des pores sont observés à la sortie du micromodèle. Il faut donc attendre un deuxième nombre capillaire critique pour voir apparaître des ganglions capables de s'écouler sur des grandes longueurs et sortir du système. Ce résultat est confirmé grâce à l'analyse des tailles des gouttes en sortie ainsi que par le suivi du déplacement du front de saturation. La vitesse des gouttes d'huile qui se déplacent est du même ordre que celle de la phase acqueuse.

Finalement, nous avons montré que le déplacement de l'huile est régi par des phénomènes de fragmentation/piégeage. Nous n'avons dans aucune des expériences observé la coalescence de gouttes d'huile.

Une modélisation du piégeage de l'huile basée sur l'observation expérimentale a été proposé. Elle montre qu'à partir de la description de la dynamique d'échange entre l'huile piégée et l'huile mobile pilotée par des mécanismes de piégeage/dépiégeage il est possible de reproduire les résultats expérimentaux.

Dans le chapitre suivant…

Ce chapitre montre des résultats importants qu'il est nécessaire à prendre en compte pour la modélisation des écoulements d'huile qui ne sont pas observables dans un échantillon de roche naturelle. Fort de ces observations et des courbes de désaturation capillaires dans le chapitre 3, nous nous attarderons sur la production d'huile dans un échantillon de grès de Clashach.

Chapitre 5 – Production de l'huile résiduelle en milieu poreux naturel

Dans cette partie, notre objectif est d'étudier le débit de production d'huile en revenant à l'échelle d'un échantillon de roche naturelle à l'état de saturation résiduelle en huile. En injectant notre solution tensioactive, nous nous placerons dans les conditions de dépiégeage/fragmentation/transport des ganglions étudiés dans le micromodèle du chapitre précédent. Nous tenterons d'observer le débit de production d'huile en sortie d'échantillon pour déterminer les propriétés : temps d'arrivée des premières gouttes d'huile, durée de la production, lien avec l'arrivée du tensioactif.

Dans le contexte de nos expériences, le milieu poreux est initialement en saturation en huile résiduelle, c'est-à-dire que les ganglions d'huile sont déconnectés et de tailles variables, à l'issue d'une injection d'eau préalable. Les propriétés interfaciales de la formulation tensioactive permettent d'atteindre un nombre capillaire supérieur au nombre capillaire critique permettant ainsi de dépiéger l'huile. Ce nombre capillaire critique a été déterminé au laboratoire à l'aide des courbes de désaturation capillaire ($N_c = 5.10^{-5}$ comme vu dans le chapitre 3)

Un des objectifs de ce chapitre est d'observer si l'arrivée de l'huile en sortie du milieu poreux lors de l'injection de tensioactif conduit à un retard, une avance ou une synchronisation de l'élution de ce tensioactif. En effet, comme nous l'avons vu dans le premier chapitre, un certain nombre d'études montrent que le tensioactif est produit en sortie du milieu poreux bien après l'arrivée d'huile. L'explication généralement donnée est la création d'un banc d'huile mobile au sens de Darcy diminuant alors le débit d'eau dans l'échantillon et séparant le tensioactif et l'huile.

Ce résultat nous semble paradoxal car à saturation résiduelle en huile, les ganglions sont piégés et leur dépiégeage nécessite la présence du tensioactif aux interfaces. Ainsi, on peut se dire que tout fragment d'huile mobile possède nécessairement du tensioactif à son interface. Même s'il contacte d'autre ganglions d'huile, la présence de tensioactif aux interfaces doit être détecté. Notre méthode expérimentale par spectrophotométrie permet de détecter une

présence même faible de tensioactif à la sortie du système et en même temps la présence d'huile grâce au colorant rouge.

Nous étudierons la production d'huile due à l'injection de la formulation tensioactive à différents débits. Pour un débit donné, correspondant à un nombre capillaire Nc, la production d'huile se traduit par un nouvel état de saturation qui sera déterminé de la manière la plus précise qui soit. On détermine une nouvelle CDC qui sera comparé avec les résultats des CDC préalablement obtenus

5.1 Protocole expérimental

5.1.1 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental est le dispositif coreflood mis en place dans les chapitres précédents.

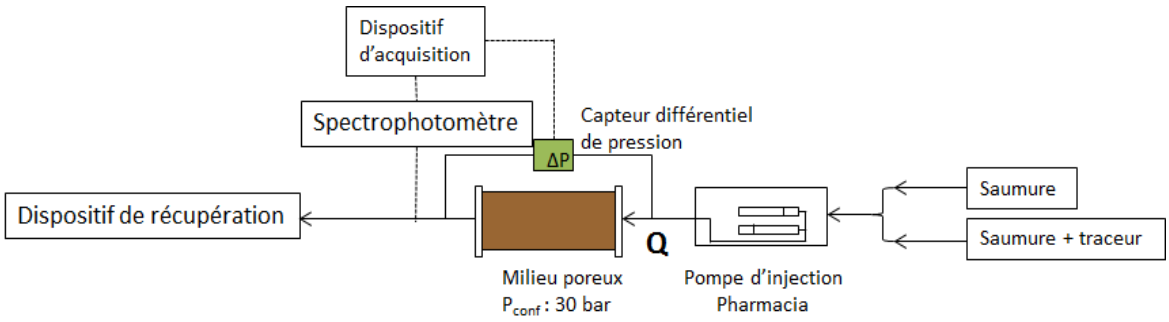


Figure 107 – Dispositif expérimental coreflood pour l'étude de la production d'huile

L'échantillon est celui du chapitre précédent (échantillon D) que l'on place en saturation en huile résiduelle par centrifugation et imbibition spontanée. Ainsi, à l'aide du spectrophotomètre en ligne, on pourra visualiser un signal propre à l'huile. Sur la Figure 108, nous avons superposé les spectres des différentes solutions utilisées. Le colorant de l'huile donne une absorbance notable au-dessus de 285 nm de longueur d'onde soit au-dessus du signal du SDBS que nous suivons à 261nm. La longueur d'onde correspondant à l'huile est considérée arbitrairement à 550 nm (domaine du visible), très distincte donc des longueurs d'onde considérées pour le SDBS et le KI. Ainsi, nous pouvons suivre la présence des deux phases.

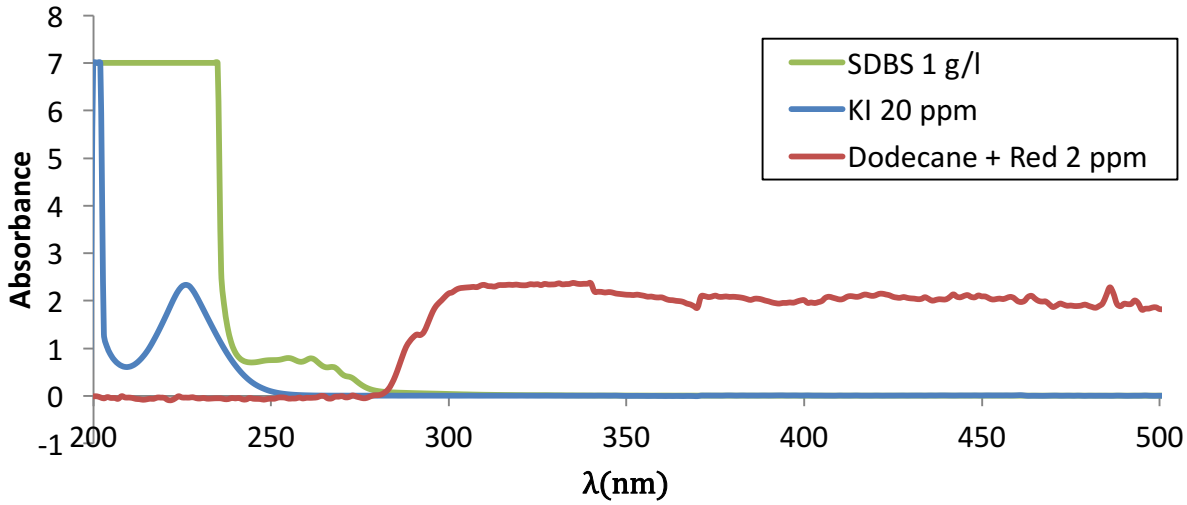


Figure 108 – Superposition des spectres de traceur passif, formulation tensioactive et de l'huile colorée en rouge

La solution d'huile colorée est réalisée à partir d'un mélange de dodécane et de rouge organol (Merck millipore, Sudan III) à une concentration très faible égale à 2 ppm permettant ainsi d'obtenir une absorbance inférieure à 3 unités et correspondant au seuil maximum de détection du spectrophotomètre Jasco en ligne. Une étude a été réalisée afin d'étudier une éventuelle influence de la concentration du colorant rouge sur la valeur de la tension interfaciale et ce, pour plusieurs salinités en NaCl. Les mesures de tension ont été réalisées au tensiomètre à goutte tournante.

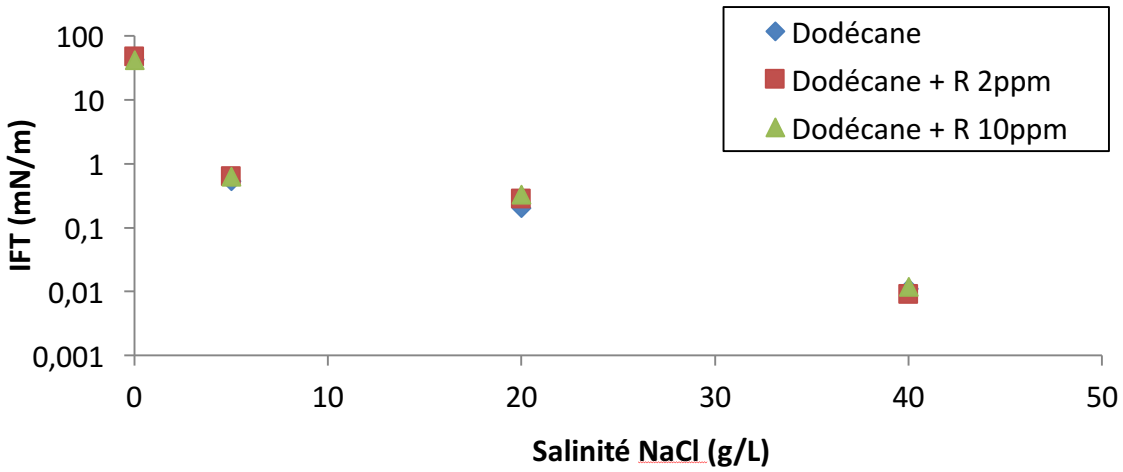


Figure 109 – Evolution de la tension interfaciale pour la formulation SDBS 1g/L et différentes salinités en fonction de la concentration en colorant rouge dans l'huile mesurée par goutte tournante

D'après la Figure 109, on s'aperçoit que quel que soit la concentration en colorant dans l'huile, cela n'a pas d'influence sur la mesure de la tension interfaciale mesurée en goutte tournante. Ce résultat est aussi vrai lorsque l'on augmente la salinité de la phase aqueuse.

Comme illustré en Figure 107, en aval du spectrophotomètre, on place un dispositif de récupération qui est une burette graduée de 20 ml permettant de quantifier le volume d'huile produit pour chaque palier de nombre capillaire. Le tubing de sortie du montage coreflood est branché à l'ouverture au centre de la burette : ainsi l'huile, moins dense que l'eau, remonte à la surface. La quantité d'huile produite est photographiée (acquisition automatique au cours du temps) et également déterminée visuellement par lecture des graduations sur la burette. L'eau produite est quant à elle évacuée par le biais d'une vanne de soutirage placée en bas de la burette.

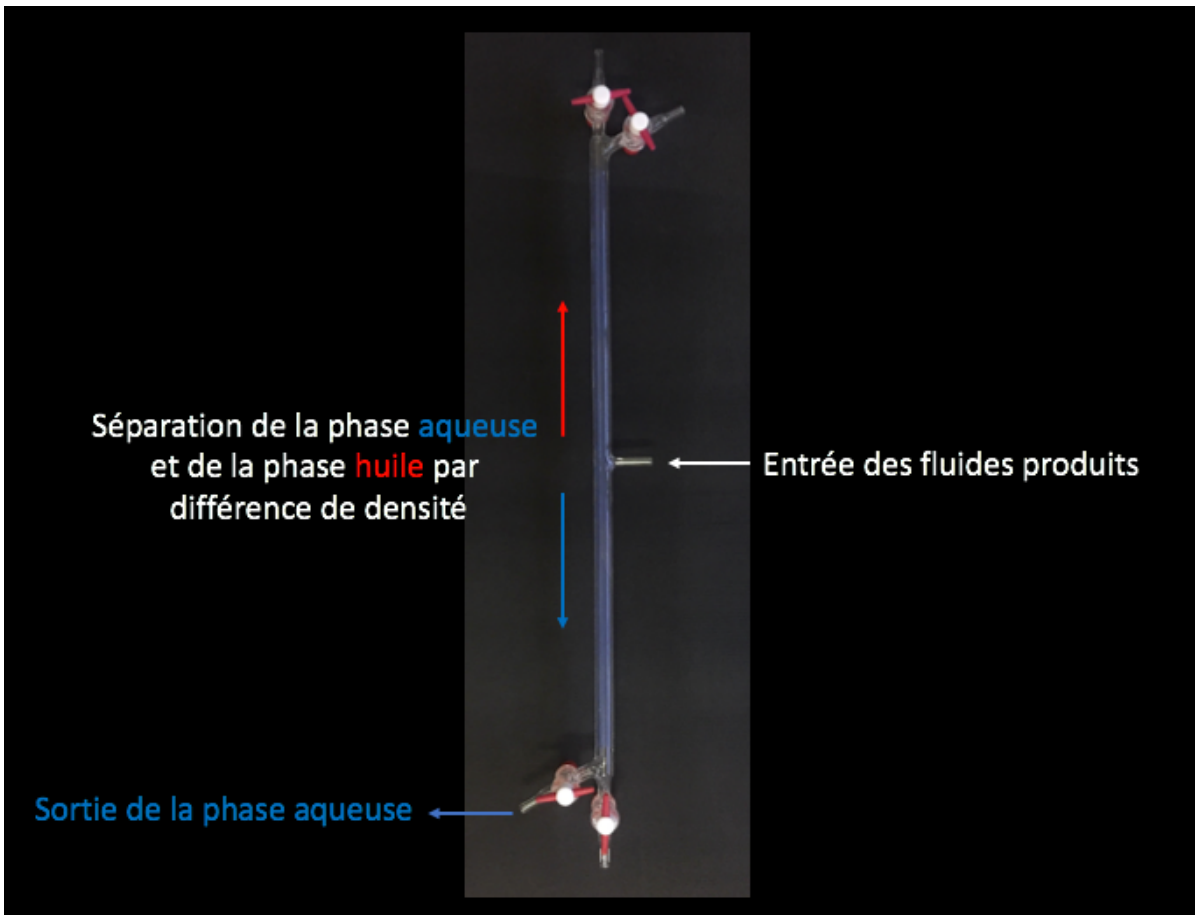


Figure 110 – Design de la burette en sortie de montage pour la quantification de l'huile produite

5.1.2 Sélection des débits d'injection pour l'étude de la production d'huile

On réalise l'étude de la production d'huile résiduelle pour des débits dépiégeants compris entre 100 et 500 ml/h avec un pas de 50 ml/h. Les valeurs des nombres capillaires pour les différents débits étudiés ainsi que le report de ces valeurs sur la courbe de désaturation capillaire obtenues expérimentalement par centrifugation sont reportées sur la Figure 111 (rectangle brun). Les valeurs des nombres capillaires ainsi obtenues sont obtenues pour une valeur de la tension interfaciale entre le dodécane coloré et la formulation tensioactive de 0,4 mN/m (Figure 109).

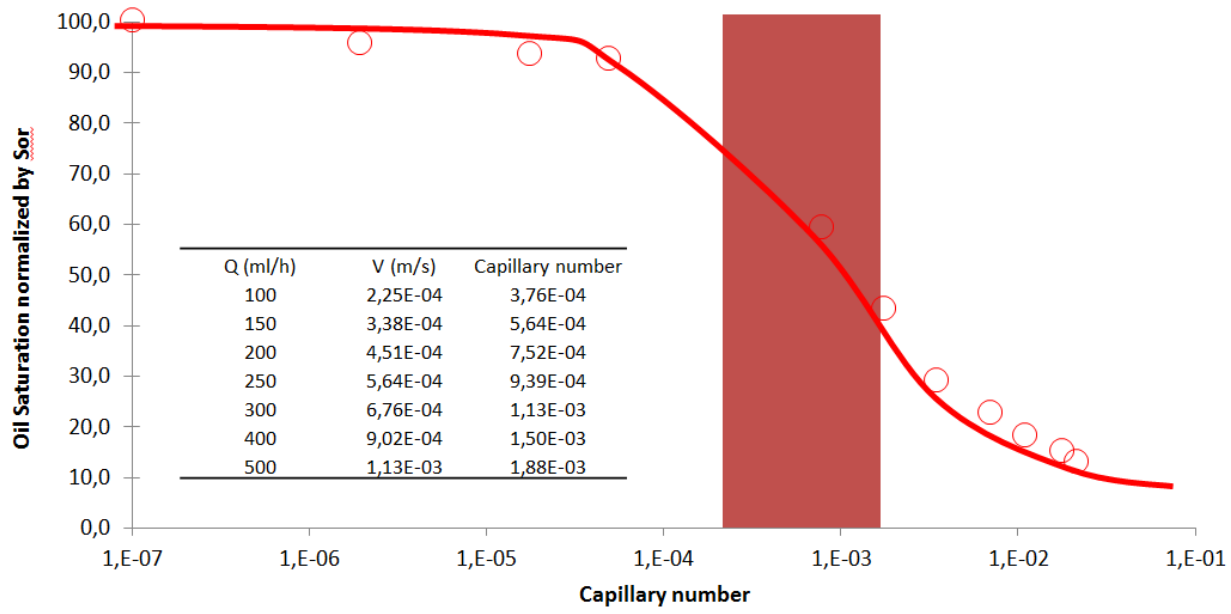


Figure 111 –Courbe de désaturation capillaire obtenue par centrifugation (courbe rouge) et domaine de nombres capillaires investigué (rectangle brun) dans les expériences de flooding.

A l'aide de la courbe de désaturation capillaire, on anticipe la production d'huile pour chaque palier de débit d'injection correspondant à un nombre capillaire comme indiqué sur le tableau dans la Figure 111. En référence à la courbe de CDC obtenue par centrifugation, 25% de l'huile résiduelle devrait être produite au débit de 100 ml/h ($Nc = 3{,}7.10^{-4}$), et 65% pour un débit de 500 ml/h ($Nc = 1{,}88.10^{-3}$)

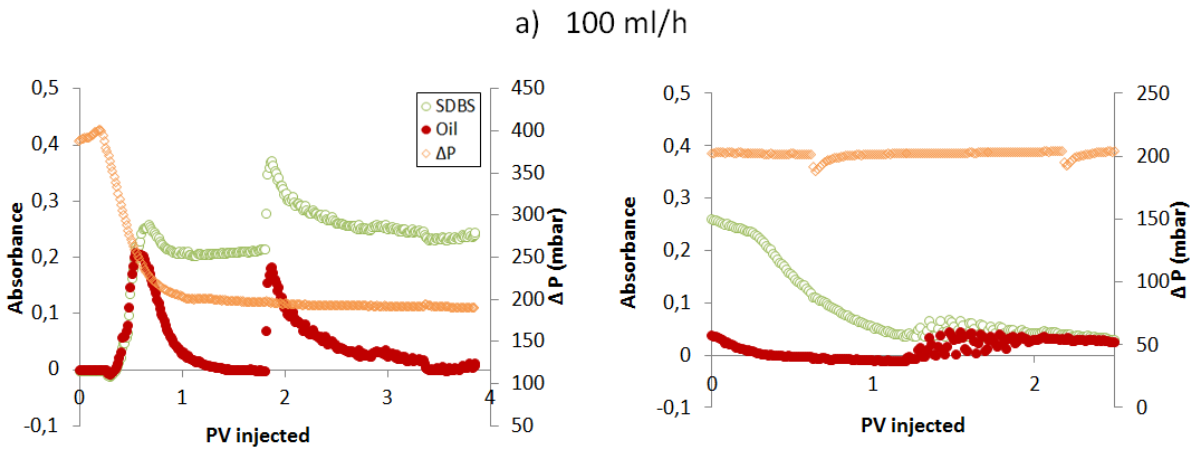
5.1.3 Protocole pour l'injection des solutions

Au départ de chaque étape, l'échantillon est saturé en huile et en saumure NaCl 5 g/l sans SDBS. A t=0, on injecte la formulation tensioactive, mélange de NaCl 5 g/l et de SDBS 1 g/l dans le milieu poreux à un débit donné. Le volume de solution injectée est variable selon les expériences du fait que l'on attend que le signal de pression aux bornes du milieu poreux et le signal d'absorbance donné par le spectrophotomètre se stabilisent témoignant ainsi de la fin de la production d'huile, le système est alors à une saturation stable. On réalise ensuite l'injection de saumure NaCl 5g/l sans tensioactif étape dite de « chasse » permettant de balayer le tensioactif libre dans le milieu poreux et permettant également un relargage possible d'une partie du tensioactif adsorbé et une récupération additionnelle d'huile. A la fin de cette séquence, lorsque le signal d'absorbance du tensioactif est revenu à zéro, on réalise plusieurs débits de saumure (en prenant soin de rester sous le capillaire critique) pour mesurer la perméabilité à l'eau du système à chaque palier de saturation.

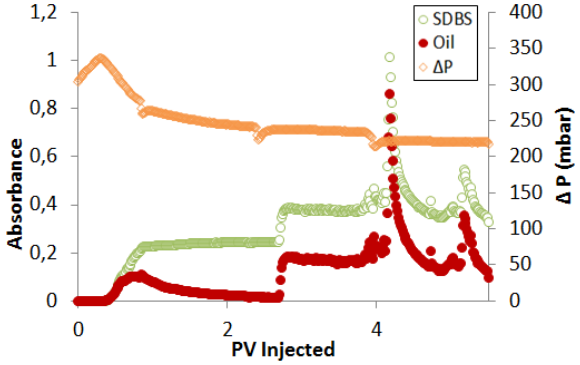
5.2 Analyse/quantification de la production de l'huile résiduelle

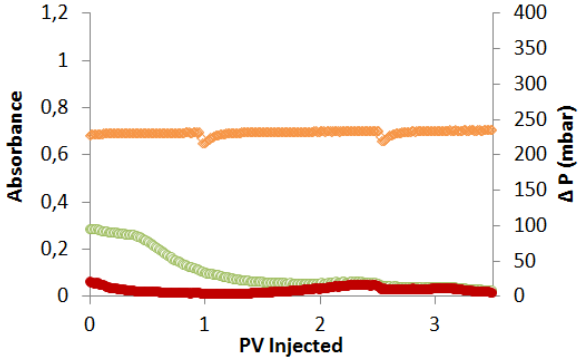
5.2.1 Spectrophotométrie multi longueur d'onde en ligne

On enregistre pour chaque pas de débit le signal du spectrophotomètre (absorbance) aux longueurs d'onde correspondant au SDBS, à l'huile colorée et le signal de pression (ΔP exprimé en mbar).

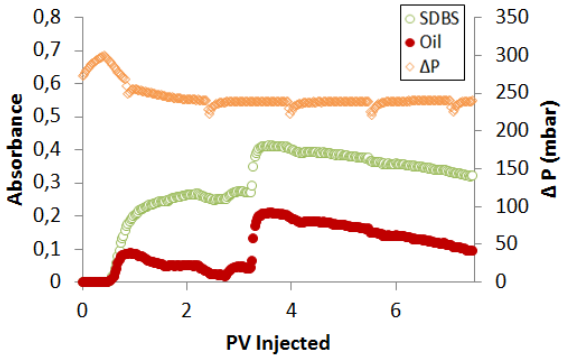


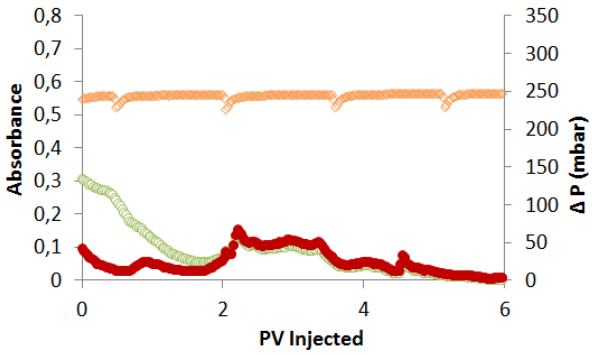
b) 150 ml/h



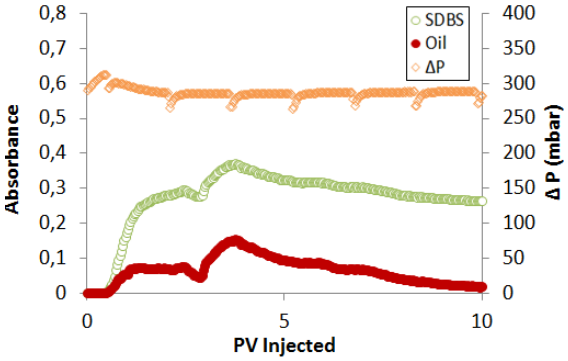


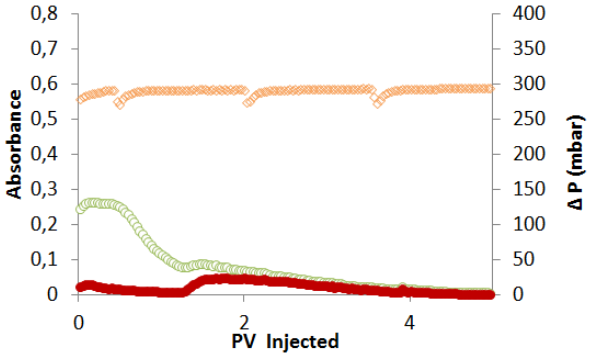
c) 200 ml/h





d) 250 ml/h





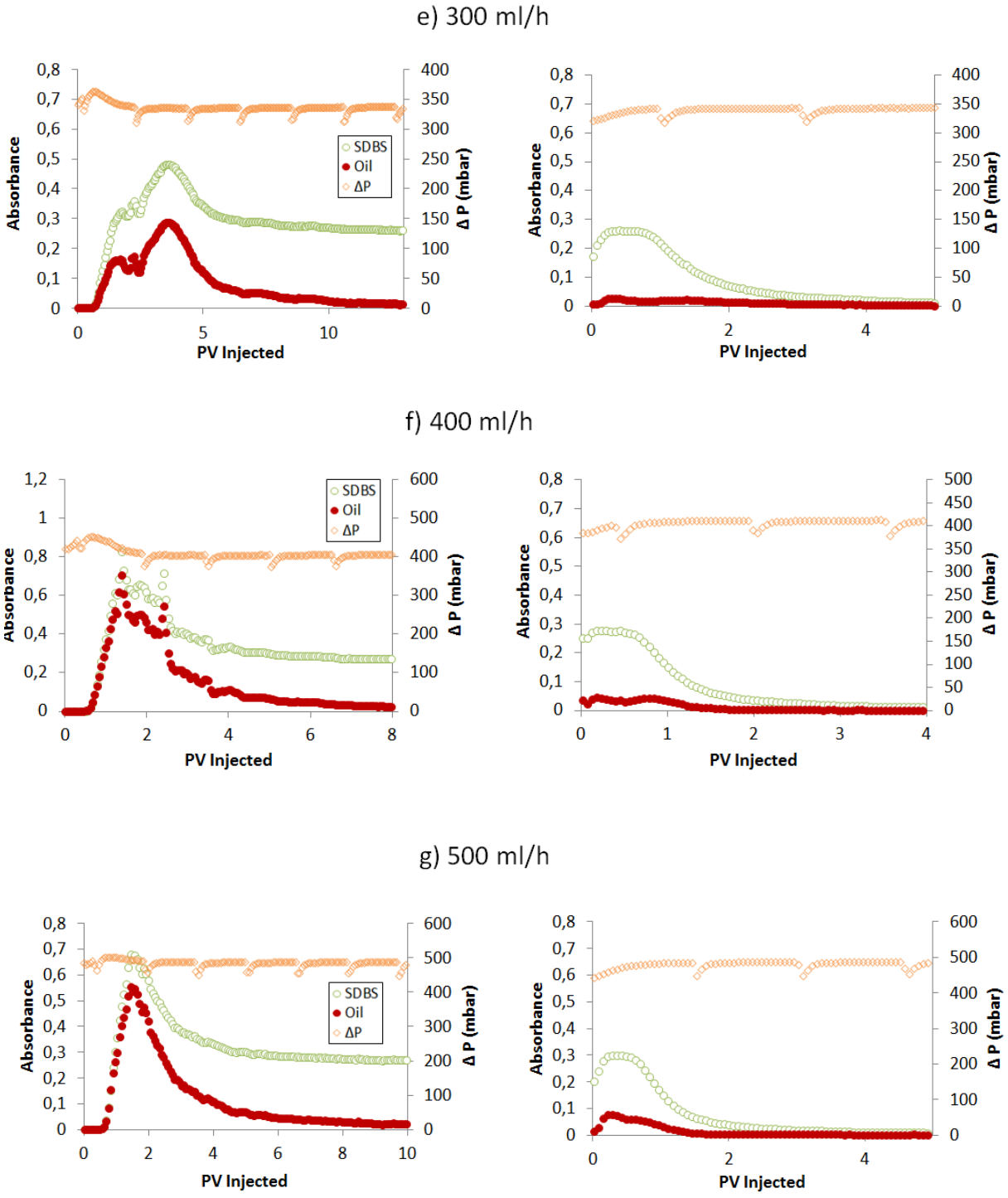


Figure 112 – Signal du spectrophotomètre et du capteur de pression différentiel lors de la récupération de l'huile résiduelle à différents débits. *Les courbes de gauche sont obtenues suite à l'injection de la formulation tensioactive. Les courbes de droite sont obtenues lors de l'étape de chasse au cours de laquelle on injecte la saumure.*

La Figure 112 présente l'ensemble des résultats obtenus pour les différents débits investigués. Sur les courbes, on trace à la fois l'évolution de la différence de pression entre l'amont et l'aval de la cellule, le signal du spectrophotomètre Jasco (longueur d'onde de 261 nm pour le SDBS et de 550 nm pour l'huile colorée).

5.2.2 Burette graduée

A chaque palier de débit on réalise un cliché de la burette graduée permettant d'évaluer la quantité d'huile produite. On montre ainsi sur la Figure 113, les différents clichés réalisés en fin de récupération.

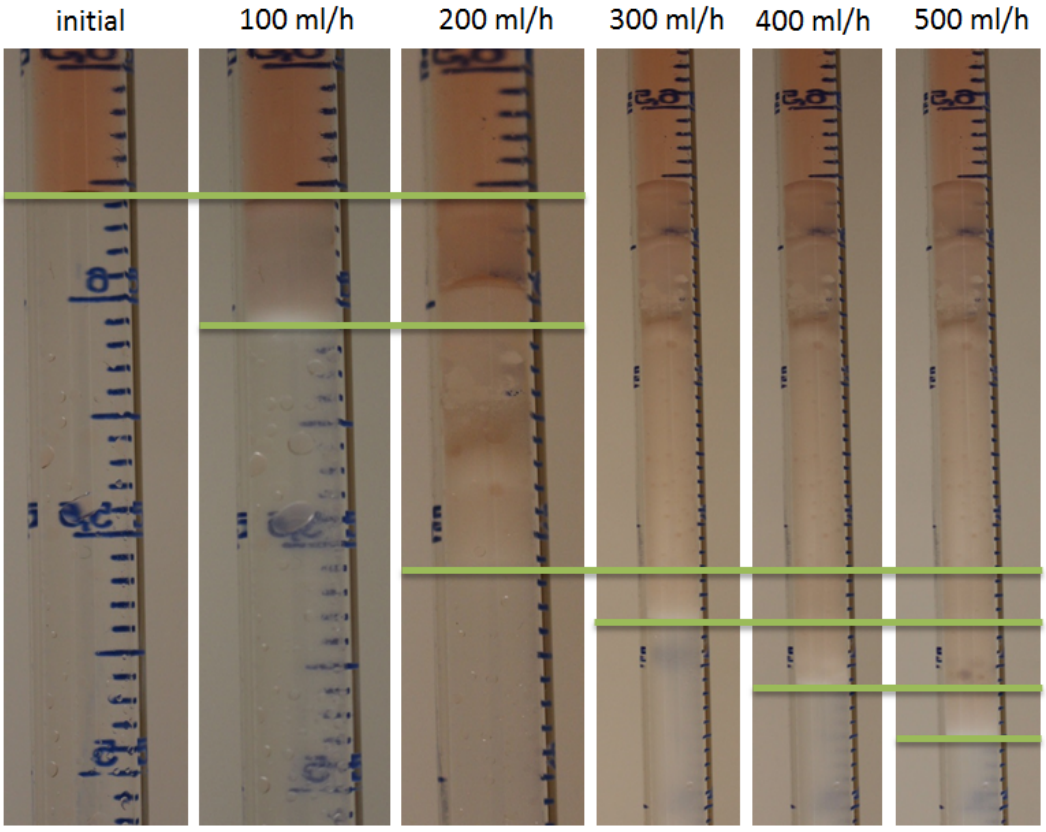


Figure 113 – Mesure de la quantité d'huile produite dans le dispositif de récupération après chaque palier de débit

Lors des expériences, on constate que l'huile sort bien sous forme d'une émulsion. Les clichés pris de la burette graduée reportés en Figure 113 montre que la décantation n'est pas parfaite et les volumes recueillis sont encore un mélange d'eau et d'huile. Les volumes d'huile ainsi produits sont estimés par lecture des graduations avec deux hypothèses : pas

d'eau résiduelle et 15% d'eau résiduelle. On peut dès lors tracer une courbe de désaturation capillaire dans cet échantillon et la comparer avec celles obtenues précédemment par centrifugation et montage CAL-X

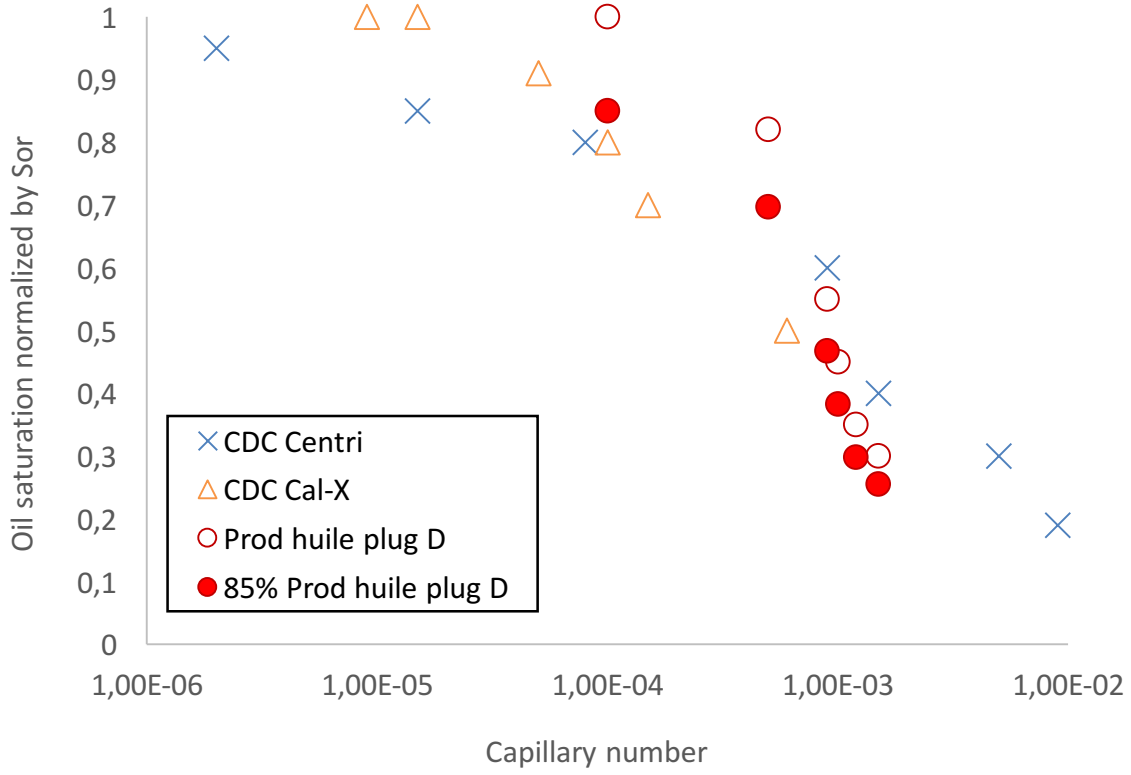


Figure 114 – Comparaison entre la production d'huile avec le montage coreflood et les CDC obtenues par centrifugation et le montage CAL-X

On observe bien sur la Figure 114 la même tendance en comparant les CDC avec la mesure expérimentale de la production d'huile, de plus il semble pertinent de considérer que l'huile produite sous forme d'émulsion comporte une part d'eau résiduelle non négligeable. En considérant un mélange d'huile et de15% d'eau résiduelle dans l'émulsion, on obtient une meilleure estimation de l'huile produite par l'approche des courbes de désaturation capillaires.

5.2.3 Détermination de la perméabilité en fin d'injection

Après chaque expérience on réalise une injection de saumure à plusieurs débits pour mesurer la perméabilité du système à chaque palier de saturation. La perméabilité à l'eau de l'échantillon D valant $K = 1200\ mDarcy$.

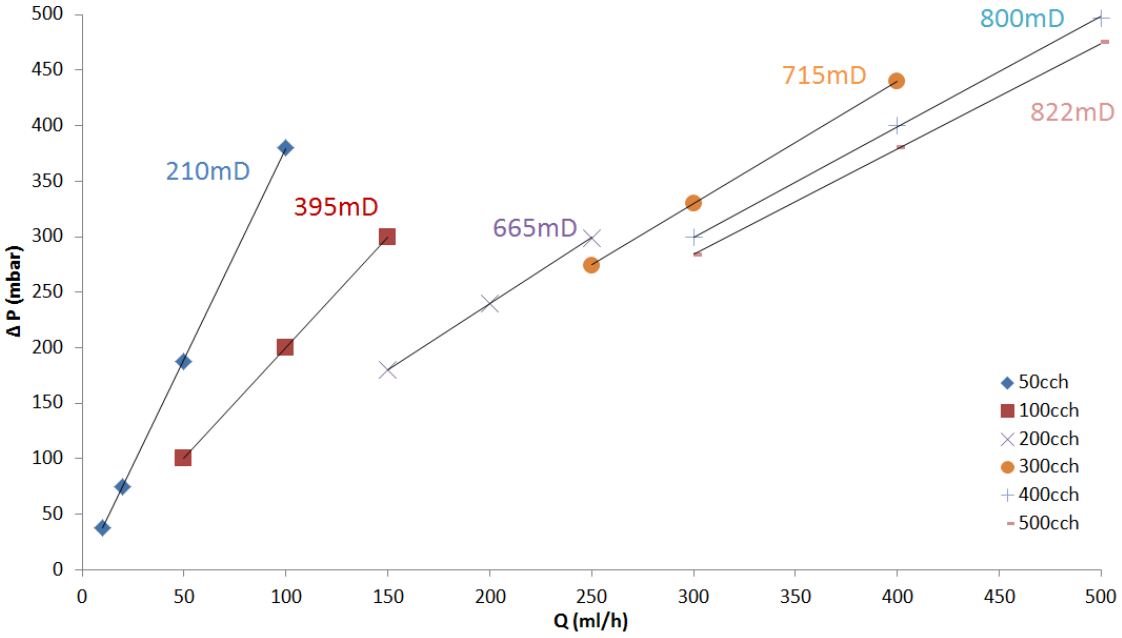


Figure 115 – Evolution de la perméabilité pour les différents paliers de débits après la récupération de l'huile (exprimée en mD)

D'après les résultats de ces expériences, nous pouvons souligner un certain nombre d'observation. Tout d'abord, on s'aperçoit qu'il existe une synchronisation entre le signal de l'huile et du tensioactif. Dès que l'huile commence à être produite, le tensioactif l'est aussi. Cette observation contredit les analyses classiques de coreflood (Mohammadi 2008) montrant une sortie tardive du tensioactif par formation d'un front d'huile. Il est important de noter que la différence entre cette étude et les études plus classiques réside dans l'analyse en ligne des sorties d'huile et aussi de tensioactif que nous avons utilisé. Cette analyse en ligne est très sensible et permet de détecter une présence même faible de tensioactif

L'injection de saumure après l'injection de la formulation tensioactive produit une courbe de percée similaire à celle observée dans le chapitre 3. Malheureusement, nous n'avons pas eu le temps d'exploiter plus en détail ces résultats. On constate également pour chaque débit que l'injection de saumure s'accompagne d'une légère production d'huile qui n'est pas significative.

Lors des différentes injections, il est clair que le signal d'absorbance de l'huile reste qualitatif. En effet, on ne peut pas le relier simplement à un volume d'huile produit. Nous considérerons simplement qu'il s'agit d'une présence d'huile.

La présence de doubles pics de production pour les débits de 100, 150 et 200 ml/h dans la Figure 112 (mais aussi observés à plusieurs reprises dans d'autres expériences réalisées dans le cadre de cette étude) est surprenante et demanderait à être confirmée. Malheureusement, nous n'avons pas eu le temps dans le cadre de la thèse de reproduire de manière systématique ces expériences qui sont très délicates à mettre en œuvre. Précisons que parfois, nous observons que de l'huile est retenue dans le tubing de sortie et/ou dans la cellule du spectrophotomètre, elle n'est pas entrainée par l'écoulement d'eau par un phénomène d'adhésion de l'huile sur la surface du tubing. Le deuxième pic pourrait donc être un artefact expérimental.

Pour chaque palier, nous avons mesuré les volumes d'huile produits ainsi que la perméabilité du système, on peut donc tracer l'évolution de la perméabilité relative en eau (équation 1.2) en fonction de la saturation (Figure 116) en considérant que l'émulsion est composée de 85% de dodécane et 15% d'eau et nous complèterons la courbe des perméabilités relative à l'aide des données obtenues dans la partie 3.2 avec le montage CAL-X (Figure 51).

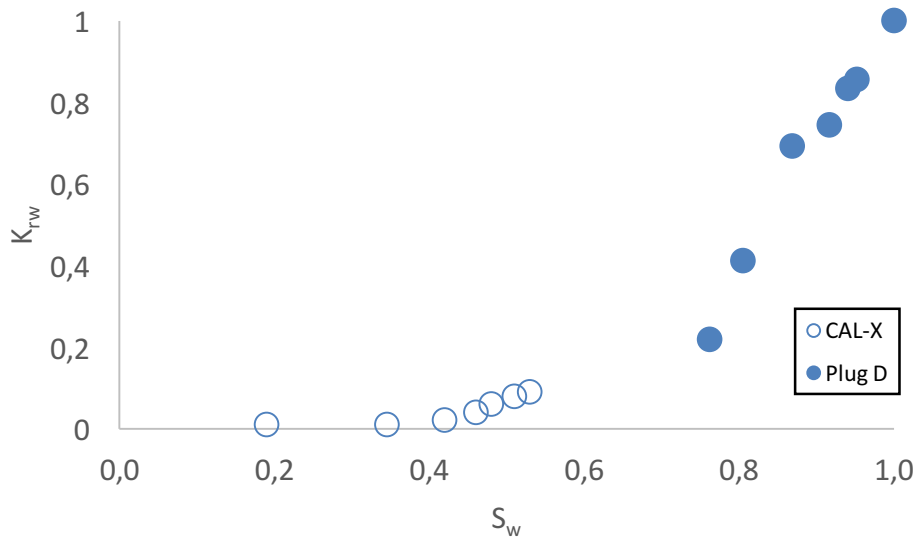


Figure 116 - Evolution de la perméabilité relative en eau en fonction de la saturation en eau

On s'appercoit que la prolongation de la courbe de perméabilité relative en deçà de la saturation en huile résiduelle s'agence bien avec celle obtenue pour les fortes saturations en huile obtenue à l'aide du montage CAL-X. Afin d'obtenir une perméabilité relative égale à 1, c'est à dire la récupération de la totalité de l'huile, on retrouve une perméabilité absolue de 960mD ce qui est plus faible que la valeur de 1200 mD déterminée expérimentalement. Ceci

peut s'expliquer par le décalage entre la mesure de la perméabilité absolue avant la mise en huile de l'échantillon qui nécessite au moins un mois (centrifugation et imbibition spontanée) pouvant avoir une incidence sur la reproductibilité des mesures de la pression par le capteur différentiel de pression.

Un autre point intéressant est de regarder l'évolution de la perméabilité relative en fonction du nombre capillaire pour des saturations en deçà de la saturation en huile résiduelle. En effet, Oughanem *et al.* (R. Y. Oughanem 2015) ont étudié l'impact de la structure de différents types de milieux poreux naturels sur la mobilisation de l'huile résiduelle. Leurs résultats montrent qu'à partir de l'étude de la structure d'un grès de Clashach (entre autres), il est possible de prédire la relation liant la perméabilité relative au nombre capillaire, tel que :

$$k_{rw}(N_c) = aN_c^{\frac{1}{2}} \tag{5.1}$$

Sur la Figure 117, nous avons tracé l'évolution de la perméabilité relative en eau en fonction du nombre capillaire et on retrouve bien les conclusions de la publication de Oughanem *et al.*

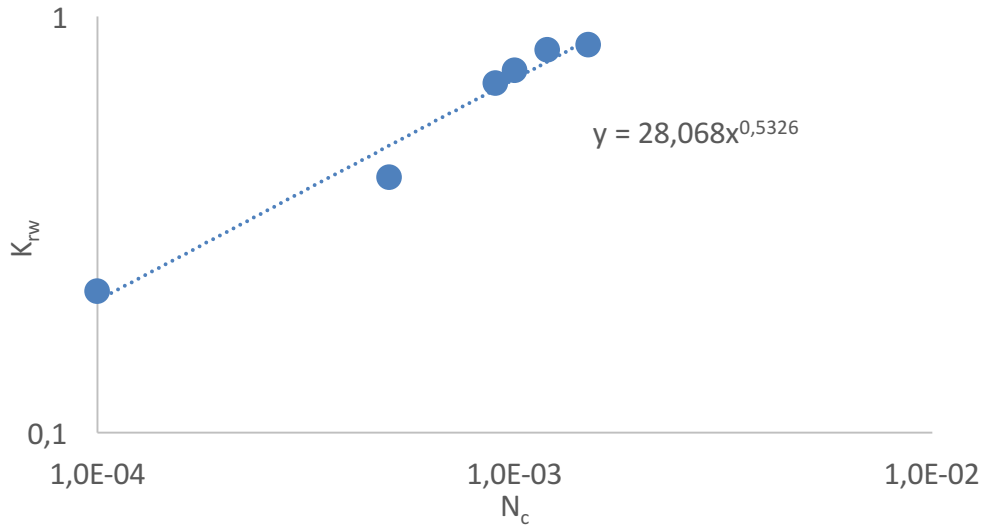


Figure 117 – Evolution de la perméabilité relative en eau en fonction du nombre capillaire

Nous avions prévu dans ce chapitre de reprendre le modèle de la dynamique du transport d'huile proposé dans le chapitre 4 pour calculer la production d'huile attendu dans l'échantillon en reprenant l'idée d'une dynamique de fragmentation, piégeage. Malheureusement, les contraintes de temps ne nous ont pas permis de mener à bien ce développement qui devient ainsi une perspective de ce travail.

Ce qu'il faut retenir…

Nous avons dans ce chapitre réalisé l'injection de la formulation tensioactive dans un échantillon de grès de Clashach afin de produire l'huile résiduelle. L'approche expérimentale faisant appel à l'utilisation d'un spectrophotomètre en sortie de cellule de Hassler ne permet pas de mesurer les volumes d'huile produits, le fluide en sortie étant sous forme d'émulsion. Ce dispositif nous a malgré tout permis d'observer une sortie d'huile et de tensioactif concomitante (dans nos conditions expérimentales) peu ou pas souvent vue dans les coreflood classiques.

Ce chapitre rassemble les observations de la production d'huile en deçà de la saturation en huile résiduelle. Ayant dans le chapitre 2 défini les propriétés pétrophysiques de notre système. Dans le chapitre 3, l'ensemble des paramètres nécessaires pour la mise en place de l'étude du transport du tensioactif en présence d'huile par le modèle de Langmuir cinétique et finalement dans le chapitre 4, les paramètres pour l'élaboration d'un modèle concernant le transport de l'huile dans le micromodèle. Il était prévu dans ce chapitre de comparer les données expérimentales de la production d'huile avec un modèle basé sur le couplage des observations faites au cours des chapitres précédents. Malheureusement, cet objectif devient une perspective, le temps nécessaire pour mener à bien ce développement étant trop important.

Conclusions et perspectives

L'objectif de la thèse était d'étudier les écoulements eau-huile-tensioactif dans un milieu poreux naturel. Nous avons pour cela mis en place différents travaux expérimentaux. Nous avons commencé par caractériser un milieu poreux naturel : le grès de Clashach. A partir d'un bloc de cette roche nous avons mesuré les perméabilités et les porosités de plusieurs carottes. Ainsi, nous avons mis en évidence une faible variabilité de ces paramètres pour les différents échantillons, la perméabilité absolue étant de l'ordre de $K = 1200\, mDarcy$ et la porosité $\phi = 16\%$, nous avons de plus mesuré la taille de seuil de pore par porosimétrie mercure.

Souhaitant étudier des écoulements complexes diphasiques (tensioactif et huile), il faut dans un premier temps s'attarder sur un écoulement simple de saumure comprenant un traceur passif, l'iodure de potassium. Nous avons ainsi étudié la dispersion dans un échantillon et mesuré sa dispersivité (proche de 1 mm pour les trois mesures effectuées).

La dispersion étant ainsi mesurée, nous avons étudié le transport d'un tensioactif, le SDBS dans le grès de Clashach. Après une phase d'étude physicochimique nous avons choisi une formulation de faible salinité et de concentration en tensioactif. Malgré une formulation tensioactive non optimale, on observe un abaissement de la tension interfaciale entre l'huile et la phase aqueuse d'un facteur 100 (par rapport à la saumure seule). Les résultats de l'étude expérimentale de la dispersion du SDBS montrent qu'en plus d'être dispersé (comme le traceur passif) celui-ci est adsorbé au cours de son transport. Il apparaît une dépendance de la vitesse de convection (imposé par le débit d'injection de la solution tensioactive) sur l'adsorption. Nous avons démontré que le modèle de Langmuir cinétique permet de bien reproduire les résultats expérimentaux en ajoutant seulement un paramètre supplémentaire par rapport à un modèle à l'équilibre.

Nous avons poursuivi l'étude expérimentale avec l'échantillon de Grès de Clashach placé à saturation en huile résiduelle. On réalise l'injection de la solution tensioactive à des nombres capillaires inférieurs au nombre capillaire critique de dépiégeage entrainant une mobilisation de l'huile résiduelle. Nous avons ainsi mis en évidence l'influence de la présence d'huile sur la dispersion et sur l'adsorption. Nous avons aussi mis en évidence que

l'utilisation du modèle de Langmuir cinétique se justifie aussi en présence d'huile, ce qui est un résultat original de cette thèse.

A faible saturation en huile, comme nous l'avons vu, le réseau d'huile est déconnecté. Cette situation nous place en dehors du cadre de Darcy et la question se pose de la mobilité de l'huile dans ces conditions. Nous avons donc mis en place un micromodèle présenté dans le chapitre 4 nous permettant d'étudier le mouvement d'un seul ganglion soumis à un écoulement Les observations expérimentales montrent qu'aucun déplacement du ganglion d'huile n'apparaît lorsque le débit d'injection est inférieur à un débit critique correspondant au nombre capillaire critique de dépiégeage. Une fois le débit d'injection supérieur à ce débit critique, le ganglion initial se fragmente directement en plus petits ganglions se repiégeant et se dépiégeant de nouveau. Nous montrons que la taille des ganglions diminue avec le nombre capillaire et qu'il faut atteindre une taille de l'ordre des pores pour voir apparaître des ganglions mobiles et susceptibles de se déplacer sur de grandes distances. Nous montrons également que la vitesse de ces ganglions d'huile est égale à la vitesse de convection de l'eau et que les ganglions produits en sortie sont de tailles égales ou inférieures au seuil de pore du milieu poreux micromodèle.

Les observations du chapitre 4 nous permettent de formuler une conclusion importante : la mobilité des ganglions est contrôlée par leur cinétique de fragmentation. Initialement, on pouvait penser que les ganglions piégés pouvaient migrer dans le milieu poreux en restant une phase continue. Mais en fait, ce n'est pas ce que nous avons observé. Nous avons montré dans ces travaux de thèse que pour notre système microfluidique poreux, les ganglions se fragmentent et se repiégent et les plus petits s'écoulent avec la vitesse de la phase aqueuse et ont une taille inférieure à la taille des pores. La production d'huile selon ces observations expérimentales est donc pilotée par la cinétique des mécanismes de piégeage dépiégeage plutôt que par le déplacement des ganglions eux-mêmes. Une modélisation du piégeage de l'huile basée sur l'observation expérimentale a été proposée. Elle montre qu'à partir de la description de la dynamique d'échange entre l'huile piégée et l'huile mobile pilotée par des mécanismes de piégeage/dépiégeage il est possible de reproduire les résultats expérimentaux.

Enfin, dans le dernier chapitre, nous avons voulu revenir à l'échelle de l'échantillon pour étudier la production d'huile dans des échantillons préalablement préparée à saturation résiduelle et donc remplie d'une population de ganglions. Nous avions prévu dans ce chapitre de reprendre le modèle de la dynamique du transport d'huile proposé dans le chapitre 4 pour calculer la production d'huile attendue dans l'échantillon en reprenant l'idée d'une dynamique de fragmentation, piégeage. Malheureusement, les contraintes de temps ne nous ont pas permis de mener à bien ce développement qui devient ainsi une perspective de ce travail.

Globalement, ce travail de thèse permet d'apporter de nombreux éléments de compréhension des conditions d'écoulement de ganglions d'huile en milieu poreux.

Bibliographie

Aris, R. 1955. "On the dispersion of a solute flowing through a tube." *Proc. R. Soc. Lond.*

Avraam, D.G., and Payatakes AC. 1995. "Generalized relative permeability coefficients during steady-state, two-phase flow in porous media and correlation with the flow mechanisms." *Transport in Porous Media 20* 135–168.

Baroud, C.N., Francois Gallaire, F., Danglaa, R. 2010. "Dynamics of microfluidic droplets ." *Lab on a chip* 2032-2045.

Bartolo, D., Degre, G., Nghe, P., Studer, V. 2008. "Microfluidic stickers." *Lab Chip* 274–279.

Batycky, J.P., Singal, A.K. 1978. "mobilisation of entrapped ganglia." *84th Natl. Meet. AIchE, Atlanta.*

Bear, J. 1972. *Dynamics of Fluids in Porous Media.* Elsevier.

Betzer, W. A. Heath and S. I. 1950. *Secondary Recovery of Oil in the United States.* New-York: American P. .

Blackwell, R.J, Rayne, J.R, Terry, W.M. 1959. "Factors influencing the efficiency of miscible displacement." *Petrol. Trans. AIME* 1-8.

Brooks, R.H., Corey, A.T. 1966. "Properties of porous media affecting fluid flow." *Journal of the Irrigation and Drainage Division (J. Irrig. Drain. Div.).*

Buckley, S.E., Leverett, M.C. 1942. "Mechanism of fluid displacements in sands." *Trans. AIME.*

Camilleri, D., Fil, A., Pope, G.A., Rouse, B.A., Sepehrnoori, K. 1987. "Comparison of an Improved compositional Micellar/Polymler simulator with Laboratory Corefloods." *SPE Reservoir Engineering.*

Chevalier, T., Salin, D., Talon, D. 2015. "History effects on nonwetting fluid residuals during desaturation flow through disordered porous media." *Physical review.*

Crocker, J.C., Grier, D.G. 1996. "Methods of Digital Video Microscopy for Colloidal Studies." *JOURNAL OF COLLOID AND INTERFACE SCIENCE* 298–310 .

Cuenca, A., Chabert, M., Morvan, M., Bodiguel, H. 2013. "Axisymmetric Drainage in Hydrophobic Porous Media Micromodels." *Oil & Gas Science and Technology – Rev. IFP Energies nouvelles,* (Oil & Gas Science and) pp. 953-962.

Darcy, H. 1856. *Les fontaines publiques de la ville de Dijon.* Paris: Dalmont.

Darmon, A., Benzaquen, M., Salez, T., Dauchot, O. 2014. "Two-phase flow in a chemically active porous medium." *The Journal of Chemical Physics.*

Datta, S., Weitz D.A. 2013. "Visualizing Multiphase Flow and Trapped Fluid Configurations in a Model Three-Dimensional Porous Medium." *AIChE Journal.*

Dombrowski, H.S., Brownell, L.E. 1954. "Residual equilibrium saturation of porous media." *Ind. Eng. Chem.*

Douarche, F., Rousseau, D.,Bazin, B.,Tabary, R., Moreau, P., Morvan, M. 2012. "Modeling Chemical EOR Processes: Some Illustrations from Lab to Reservoir Scale." *Rev. IFP Energies nouvelles* 983-997.

Ebach, E.A, Whiter, R.R. 1958. "Mixing of fluids flowing through beds of oacked solids." *AIChE J* 161-169.

Gravelle, A., Peysson, Y., Tabary, R., Egermann, P. 2011. "Experimental investigation and modelling of colloidal release in porous media." *Transport in Porous Media* 88: 441.

Green, D.G., Willhite, G.P. 1998. *Enhanced oil Recovery.* SPE Textbook series.

Gupta, S.P. 1982. "Dispersive mixing effects on the sloss field micellar system." *Society of Petroleum Engineers of AIME.*

Guyon, V. 2012. *Dispersion en milieux poreux insaturés. Modélisation et mesures RMN de distributions de vitesse.* Thèse IFP.

Healy, R. L. Reed and R. N. 1977. *Improved oil recovery by surfactant and polymer flooding.* Academic P.

Hornarpour, M. 1986. *Relative Permeability of Petroleum Reservoirs.* Boca Raton, Florida: CRC Press.

Hugues, R.G., Blunt, M.J. 2000. "Pore Scale Modeling of Rate Effects in Imbibition." *Transport in porous media* 295–322.

Huh, C. 1979. "Interfacial tensions and solubilizing ability of a microemulsion phase that coexists with oil and brine." *J. Colloid Interface Sci.* 408–426.

Khilar K.C., Fogler H.S. 1984. "The existence of a critical salt concentration for particles release." *Journal of Colloid and Interface Science* 101: 214-224.

Kwok, W.,Hayes, R.E., Nasr-El-Din, H.A. 1994. "Modelling dynamic adsorption of an anionic surfactant on Berea sandstone with radial flow." *Chemical Engineering Science* 769-783.

Legait, B., Jacquin, C. 1982. "Conditions nécessaires au passage d'un col par une goutte en déplacement dans un capillaire de section carré, en régime de Stokes." *C.R. Acad. Sci. Paris* 487-492.

Lenormand, R., Eisenzimmer, A., Delaplace, P. 1995. "Improvement of the Semidynamic Method for Capillary pressure Measurements." *SCA Conference Paper.*

Lenormand, R., Touboul, E., Zarcone, C. 1988. "Numerical models and experiments on immiscible displacements in porous media." *Cambridge University Press.*

Levaché, B., Azioune, A., Bourrel, M., Studerbc, V., Bartoloa, D. 2012. "Engineering the surface properties of microfluidic stickers." *Lab on chip* 3028-3031.

Leverett, M.C. 1941. "Capillary behavior in porous solids." *Trans. AIME 142* 152–169.

Mensire, R., Wexler, J.S., Guibaud, A., Lorenceau, E., Stone, H.A. 2016. "Surfactant and aqueous-foam-driven oil extraction from micropatterned surfaces." *Langmuir* 13149-13158.

Michales, A.S, Morelos, O. 1955. "Polyelectrolyte adsorption by kaolinite." *Ind. Eng. Chem.* 1801-1809.

Mohammadi, H. 2008. *Mechanistic Modeling, Design, and Optimization of Alkaline/Surfactant/Polymer flooding.* The university of Texas at Austin.

Morelon, I. 1988. *Dispersion d'une solution micellaire de tensio-actif au cours de sa migration en milieu poreux.* Thèse IFP.

Morrow, N. R. 1991. *Interfacial phenomena in petroleum recovery.* New York: Marcel Dek.

Musharova, A. 2012. *The Effect of Physico-Chemical Factors on the Stability and Transport of Clay Particles.* PhD, Texas A&M.

Muskat, M. 1937. *"The Flow of Homogeneous Fluids through Porous Media".* New York: McGraw- Hill book company.

Ng, K. M. 1980. "Oil ganglia dynamics in flow through porous media." *Ph.D. thesis, University of Houston, Houston, Texas.*

Ng, K.M., Davis, H.T., Scriven, L.E. 1978. "Visualization of blob mechanics in flow through porous media." *Chemical Engineering Science.*

Olbricht, L., Leal, L. G. 1983. "The creeping motion of immiscible drops through convergingfdiverging tubes." *J. Fluid Mech.* 329-355.

Oughanem, R., Youssef, S., Bauer, D., Peysson, Y., Maire, E., Vizika, O. 2015. "A Multi-Scale Investigation of Pore Structure Impact on the Mobilization of Trapped Oil by Surfactant Injection." *Transport in porous media* 673-692.

Oughanem, R., Youssef, S., Peysson, Y., Bazin, B., Maire, E., Vizika, O. 2013. "pore-scale to core-scale study of capillary desaturation curves using multi-scale 3D imaging." *SCA.*

Payatakes, A. C. 1982. "Dynamics of oil ganglia during immiscible displacement in water-wet porous media." *Ann. Rev. Fluid Mech* 365-393.

Payatakes, A.C., Dias, M.M. 1984. "Immiscible microdisplacement and ganglion dynamics in porous media." *Rev. Chem. Engng* 85-174.

Payatakes, A.C., Dias, M.M. 1984. "Immiscible microdisplacement and ganglion dynamics in porous media." *Rev; Chem. Engng* 85-174.

Perkins, T. K., Johnston, O. C. 1963. "A review of diffusion and dispersion in porous media." *J. Soc. Petrol. Eng* 70-84.

Pfannkuch, H.O. 1963. "Contribution à l'étude des déplacements de fluides miscibles dans un milieu poreux." *Rev. IFP* 215-219.

Rapin, S. 1980. "Behavior of non-wetting oil ganglia displaced by an equeous phase." *M.S. thesis, University of Houston, Houston, Texas.*

Romano, M., Chabert, M., Cuenca, A., Bodiguel, H. 2011. "Strong influence of geometrcal heterogeneity on drainage in porous media."

Rouaud, T., Baviere, M. 1990. "solubilization of hydrocarbons in micellar solutions. Influence of structure and molecular weight." *Revue IFP* 605-620.

Sahimi, M. 2011. *Flow and Transport in Porous Media.* Weinheim, Germany: WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA.

Salager, J.L. 2000. "Partitioning of ethoxylated octyl-phenol surfactants in microemulsion-oil-water systems : Influence of temperature and relation between partitioning coefficient and physicochemical formulation." *Langmuir* 5534-5539.

Scheidegger, A.E. 1985. *The physics of flow through porous media.*

Shen, P., Zhu, B., Wu, Y.S. 2010. "An experimental study of the influence of interfacial tension on water-oil two-phase relative permeability." *Transp porous med.*

Sheng, J.J. 2011. *Modern chemical enhanced oil recovery.* Elsevier.

Slichter, C.S. 1905. "Field measurement of the rate of mouvement of underground waters." *US Geol surv water supply* (US Geol surv water supply) Pap 140.

Stegemeier, G.L. 1977. "Mechanisms of entrapment and mobilization of oil in porous media." *In:Shah, D.O., Schechter, R.S. (Eds.), Improved Oil Recovery by Surfactant and Polymer Flooding.*

Taylor, G. I. 1953. "Dispersion of soluble matter in solvent flowing slowly through a tube." *Proc. R. Soc. Lond. A.*

Trogus, F. 1976. "Adsoprtion of surfactant on mineral oxide surfaces." *Symposium on Enhanced Oil and Gas Recovery.* Tulsa.

Wilke, C. R., et Pin Chang, P. 1955. "Correlation of Diffusion Coefficients in Dilute Solutions ." *AIChE Jounal.*

Willhite, G. P. 1986. *Waterflooding.* Texas: Richardson: SPE Textbo.

Winsor, P.A. 1948. "Hydrotropy, solubilization and related emulsifiaction processes." *Trans. Faraday.*

Yiotis, A. G., Talon, L., Salin, D. 2013. "Blob population dynamics during immiscible two-phase flows in reconstructed porous media." *Physical review.*

Youssef, S., Rosenberg, E., Gland, N., Bekri, S., Vizika, O. 2007. "Quantitative 3D Characterization of the poez space of real rocks: improved micro-ct resolution and pore extraction methodology." *int. sym. of the society of core analysts.*

Zinszner, B., Pellerin, F.M. 2007. *A Geoscientist's Guide to Petrophysics.* paris: Editions Technip.

Table des figures

Figure 1 - Système pétrolier (crédit : IFPEN)....15
Figure 2 – Forme générale des courbes de perméabilités relatives 19
Figure 3 - Représentation schématique de l'effet du rapport des viscosités (R. T. Lenormand 1988) *a) rapport des viscosité élevé, front instable, b) viscosité de l'eau et de l'huile proche, font stable*....22
Figure 4 – Rayons de courbure de l'interface dans un capillaire....23
Figure 5 – Courbe de pression capillaire en drainage et en imbibition 24
Figure 6 - Exemple de deux familles de surfactants utilisés pour l'EOR chimique 26
Figure 7- Distribution des molécules de tensioactifs avant (a) et après (b) la CMC (Sheng 2011) 27
Figure 8- Types de microémulsions selon la salinité de la phase aqueuses (Sheng 2011)....28
Figure 9- Evolution des tensions interfaciales en fonction de la salinité (Rouaud 1990)....29
Figure 10 – Courbes de désaturation capillaires obtenues par différents auteurs et synthétisée par (Stegemeier 1977)....30
Figure 11- Structure des ganglions d'huile dans un milieu poreux 3-D constitué de billes de verre (Datta 2013) 32
Figure 12 – Distribution à l'échelle microscopique de l'huile piégée après imbibition spontanée (Youssef 2007)....33
Figure 13 : Distribution de la phase huile à Sor pour 4 types de grès naturels (Youssef 2007). 34
Figure 14- Bilan de force sur un ganglion 35
Figure 15- Synthèse bibliographique des courbes de production d'huile et de tensioactif *a)* (Mohammadi 2008)*, b)* (Gupta 1982)*, c)* (Camilleri 1987)....37
Figure 16- Courbes de perméabilités relatives obtenues pour différentes valeurs de nombres capillaires en fonction a) de la saturation en eau b) de la saturation en eau normalisée (Shen 2010) 38
Figure 17 – Mélange de deux fluides au cours de l'écoulement d'un traceur en milieu poreux (Bear 1972) 41
Figure 18 – Courbe de percée dans le cas d'un écoulement unidimensionnel dans un empilement de grains de sable 42
Figure 19 – Montage expérimental....44

Figure 20 – Photographies des composants du montage. *a) Pompe Pharmacia, b) Cellule Hassler* 45
Figure 21 – Photographies des composants du montage. Spectrophotomètre en ligne Jasco. .45
Figure 22 – Structure du SDBS 46
Figure 23 – Diagramme de salinité de la formulation tensioactive, chaque tube à la même composition, seule la concentration en NaCl (en g/L) change. 47
Figure 24 – Evolution de la hauteur de chaque phase en fonction de la salinité 48
Figure 25 – Evolution de la tension interfaciale de phase aqueuse et de la phase organique avec la microémulsion en fonction de la salinité (méthode de Huh) 49
Figure 26 - Spectres des solutions de KI et de SDBS. *Colonne de gauche, les spectres obtenues pour les solutions de KI (1 ppm=1 mg/L) et de SDBS. Sur la colonne de droite, on trace l'évolution de l'absorbance de ces molécules en fonction de leur concentration dans la saumure.* 51
Figure 27 – Courbe de Percée du SDBS pour des débits Q=2 ml/h, Q = 5 ml/h et Q=10 ml/h. La superposition du modèle et des résultats expérimentaux est optimale pour un Pe=87 lorsque Q=2 ml/h, Pe=35 lorsque Q=5 ml/h et de Pe=17 lorsque Q=10 ml/h. 53
Figure 28 - Coefficient de dispersion de Taylor en fonction de la vitesse de convection 54
Figure 29 – Hétérogénéité de la porosité dans un champ pétrolifère 55
Figure 30 – Histogramme des vitesses au niveau du champ considéré 55
Figure 31 – (a) *Photographie d'un échantillon de roche (mini-plug), (b) Coupe de l'échantillon réalisée par microtomographie.* 56
Figure 32 – Mise sous vide de l'échantillon en dessiccateur 57
Figure 33 – Distribution de la taille des seuils de pores d'un échantillon de grès de Clashach par porosimétrie mercure 58
Figure 34 - Dispositif expérimental pour la mesure de la perméabilité 60
Figure 35 – Relation débit (Q) en fonction de la pression (ΔP) permettant la détermination de la perméabilité d'un échantillon. Le fluide injecté pour mesurer la perméabilité est un mélange d'eau et de NaCl 5g/l de viscosité 1 cP à température ambiante. 61
Figure 36 –Porosité et perméabilité pour plusieurs échantillons. 61
Figure 37 – Evolution de la concentration du KI en fonction du temps pour un débit donné ..62
Figure 38 – Schéma du dispositif entre la sortie de l'échantillon et l'entrée du spectrophotomètre 63

Figure 39 – Evolution de la concentration du KI en sortie de cellule en fonction du volume de pores injectés (temps adimensionné) pour un débit donné (avec prise en compte des volumes morts). 63
Figure 40 - Evolution de la concentration d'un traceur au cours du temps dans un échantillon 64
Figure 41- Géométrie et écoulement dans l'échantillon 64
Figure 42 – Courbe de percée à plusieurs débits d'injections du traceur KI en fonction du volume de pore injecté. La courbe noire représente l'évolution de la concentration sans dispersion. 67
Figure 43 – Concentration normalisée en sortie d'échantillon en fonction du nombre de volumes de pores injectés pour plusieurs débits d'injection. Comparaison entre les expériences et la solution analytique de Perkins et Johnston de l'équation de convection dispersion. 68
Figure 44 – Mise en évidence de la dispersivité du milieu poreux : coefficient de dispersion en fonction de la vitesse de convection. 69
Figure 45 – Courbe de percée pour plusieurs séquences d'injection de SDBS 70
Figure 46 – Comparaison entre le modèle de Langmuir à l'équilibre et les données expérimentales de dispersion de SDBS en milieu poreux pour $Q^* = 0{,}25$ g/l et $\lambda = 0{,}45$ l/g 73
Figure 47 – Courbes de percées du SDBS pour différent débits. Comparaison entre les expériences et le modèle de Langmuir cinétique 76
Figure 48 : Schéma de la séquence d'injection d'eau 80
Figure 49 – Photographie de la cabine CAL-X 81
Figure 50 – Evolution de la pression et de la saturation en huile en fonction des débits d'eau et d'huile pendant la phase d'imbibition 83
Figure 51 – Courbes de perméabilité relative de l'huile et de l'eau pour un grès de Clashach 84
Figure 52 : Phase eau huile à Sor par observation tomographique ((Oughanem 2013)) 86
Figure 53 – Un ganglion d'huile piégé (a) peut-être schématisé comme sur la partie (b) permettant ainsi de faire un bilan de force locale. *(b) à gauche : balayage à l'eau, (b) à droite : champ de gravité effective*. Le bilan de force est analogue dans les deux cas : une force dépiégeante (gradient de pression de l'écoulement ou hydrostatique) et une force piégeante (pression de Laplace pour le seuil capillaire) 87
Figure 54 – Saturation en huile en fonction de la gravité effective pour trois échantillons de grès de Clashach 91

Figure 55 – CDC des trois échantillons de grès de Clashach 92
Figure 56 – Paliers de débits pour la mise en place des CDC à partir du montage CAL-X. *A gauche : évolution de la pression, à droite : évolution de la saturation en huile* 93
Figure 57 – Courbe de désaturation capillaire obtenue par le montage CAL-X pour trois échantillons 94
Figure 58 – Comparaison des CDC obtenues par centrifugation et par le montage CAL-X....95
Figure 59 – Imbibition spontanée de l'échantillon 96
Figure 60 – Nombres capillaires pour l'injection de la formulation traceur passif sans déplacement d'huile reportés sur la CDC 98
Figure 61 – Courbe de percée du KI à saturation en huile résiduelle de 0,28 à différents débits d'injection 98
Figure 62 – Prédiction du dépiégeage de l'huile à partir de la CDC par injection de la formulation EOR.....100
Figure 63 – Dispersion de la formulation traceur passif à différents niveaux de saturation, on superpose les résultats expérimentaux à la solution analytique de Perkins et Johnston. Pour la saturation en huile résiduelle, $\mathrm{PeSor} = 30$. Pour une saturation en huile de 0,03, $\mathrm{Pe} = 40$ .100
Figure 64 – Evolution du nombre de Peclet et de la dispersivité du milieu en fonction de la saturation en huile. Le nombre de Peclet est déterminé à partir de la superposition des courbes expérimentales de percée et le modèle analytique de Perkins et Johnston. 101
Figure 65 - Nombres capillaires pour l'injection de la formulation tensioactive sans déplacement d'huile reportés sur la CDC 102
Figure 66 – Courbes de percée du SDBS dans le milieu poreux à saturation en huile résiduelle. 103
Figure 67 – Superposition des courbes de percée du SDBS en milieu poreux naturel avec le modèle de Langmuir cinétique.....104
Figure 68 – Instantané de la configuration des ganglions d'huiles piégés dans un micromodèle (Avraam 1995) 106
Figure 69 – Régimes d'écoulement des ganglions d'huile (Avraam 1995). *a) dynamique de grand ganglion, b) dynamique de petits ganglions, c) dynamique de goutte, d) dynamique sous forme d'écoulement connecté.* 107
Figure 70 – Observation des phénomènes de fragmentation et de coalescence de ganglions d'huile à l'échelle du pore à partir de la modélisation Lattice-Boltzmann (A.G Yiotis, 2013) 109

Figure 71 – Principe de génération du réseau aléatoire. *De gauche à droite :* écart-type s(k) utilisé pour la génération des nombres aléatoires, suivi d'un exemple de cette génération (image zoomée), et enfin à droite, exemple du résultat de la transformée de Fourier inverse. 110
Figure 72- Géométrie poreuse du micromodèle (la porosité apparaît en plus claire).....111
Figure 73 – Design du micromodéle (A la piscine d'injection du fluide pousseur, B le canal par lequel l'huile est injectée et C la piscine de récupération) 111
Figure 74 – Etapes de microfabrication 112
Figure 75 – Négatif du micromodèle sur le revêtement en résine SU8 du wafer après le développement 114
Figure 76 – Moule du micromodèle en PDMS 114
Figure 77 – Micromodèle final réalisé en colle NOA81 115
Figure 78 – Caractérisation du mouillage de la NOA81 traitée et non traitée au Plasma 116
Figure 79 – Angles de contact NOA81/liquide.....116
Figure 80 - Photo au laboratoire et schéma du montage microfluidique.....118
Figure 81 – Mesure de la perméabilité du micromodèle 120
Figure 82 - Ganglion initial avant balayage (*image de différence)* 122
Figure 83 – (*images de différences*) Observation de l'évolution du ganglion d'huile au cours du temps pour des débits d'injections faibles de la formulation tensioactive. *De gauche à droite, ganglion initial, Q=5µl/min (*$\mathrm{Nc} = 1{,}9.10\text{-}4$*) puis Q=10µl/min (*$\mathrm{Nc} = 3{,}8.10\text{-}4$) 123
Figure 84 – (*Images de différences)* Balayage à des débits dépiégeants avec la formulation tensioactive. 124
Figure 85 – *(Image brute)* Fragmentation du ganglion initial, lors d'une augmentation progressive du débit d'injection de la formulation tensioactive. L'huile et les piliers du micromodèle sont blancs tandis que l'eau apparait en noir. 124
Figure 86 - *(Images en fausses couleurs)* Illustration du piégeage de ganglions (taille supérieure à la taille de pore). Sur cette série d'images, on effectue une augmentation de débit en passant de 150 à 200 µl/min. 125
Figure 87 – *(haut : images en fausses couleurs, bas : images de différence)* Visualisation de sites de piégeage de gouttes. Images successives obtenues avec un débit passant de 150 à 200 µl/min pour le système huile/tensioactif. 126
Figure 88 - *(images de différences)* Balayage avec la formulation tensioactive à des débits croissants par paliers. 127

Figure 89 – Gauche : *(image en fausses couleurs)* Image obtenue en sortie pour un débit de 150 µl/min, avec le système huile/tensioactif. Droite : densité de probabilité du diamètre des gouttes produites. On obtient une moyenne de 100 µm avec un écart-type de .50 µm. 128
Figure 90 – Evolution de la saturation en huile normalisée lors de l'injection de saumure (gauche), de la formulation tensioactive (droite), par le protocole à débit fixe. 129
Figure 91 –Evolution de la valeur stationnaire de la quantité d'huile normalisée, en fonction du nombre capillaire, pour les deux protocoles et pour les deux fluides de balayage. 130
Figure 92 - Valeur stationnaire de la quantité d'huile normalisée, en fonction du nombre capillaire modifié, normalisé par cosθ 131
Figure 93 - Etude de la fragmentation : taille moyenne des ganglions en fonction du nombre capillaire 132
Figure 94 – *(Image de différence)* Identification des gouttes par détection de maxima. Les centre des gouttes détectées est représenté par des cercles bleus. 133
Figure 95 – Visualisation des trajectoires des gouttes d'huile au cours de l'injection de tensioactif. *Chaque couleur correspond à la trajectoire d'une goutte.* 134
Figure 96 – Distance parcourue dans le sens de l'écoulement par les ganglions d'huile au cours du temps. 135
Figure 97 – Distribution des vitesses instantanées selon les axes x et y 135
Figure 98 – Meilleurs ajustements (en bleu) par une double Gaussienne obtenus pour les distributions de vitesses suivant x (à gauche) et y (à droite). Les valeurs des coefficients des ajustements sont reportées Figure 99. 136
Figure 99 – Coefficients des meilleurs ajustements par une double Gaussienne. 136
Figure 100 – découpage en cinq zones du micromodèle 137
Figure 101 – Evolution de la saturation en huile dans 5 zones définis du micromodèle au cours de l'injection de la formulation tensioactive à différent débits. 138
Figure 102 – Comparaison des vitesses interstitielles et des vitesses mesurées du front de saturation à partir des points d'inflexion des courbes de saturation. *A gauche, il s'agit des vitesses de front pour le système huile/tensioactif à droite, les vitesses sont celles du système huile/saumure.* Les barres d'erreurs correspondent à aux écarts de vitesses mesurées avec les différents temps de passage du front par rapport à la moyenne des vitesses obtenues. En rouge est tracée la première bissectrice 139
Figure 103 : Evolution temporelle de la saturation, à différentes positions spatiales, suite à l'injection d'huile sous la forme d'une Gaussienne. La courbe en pointillés correspond à la

l'huile piégée (sp). Pour cette exemple, $vT = 3mm/s$, $spmax = 0.5$, $kp = 500m\text{-}1$ (à gauche) et $100m\text{-}1$(à droite).....142
Figure 104 : Ajustements de la saturation mesurée expérimentalement, en utilisant la première valeur comme condition aux limites en $x = 0$. Les données expérimentales ont été obtenue avec le système de tensioactif, et un débit de $300\mu L/min$. Les paramètres du modèle sont : $vT = 2.15\ mm/s$, $kp = 300m\text{-}1$, $spmax = 0.36$ (à gauche); $vT = 2.15\ mm/s$, $kp = 103m\text{-}1$, $spmax = 0.13$ (à droite). 143
Figure 105. Exemples d'ajustements réalisés avec le modèle de piégeage. Dans les deux cas, $kp = 103\ m\text{-}1$. A gauche, pour un débit de 150 $\mu L/min$, et à droite de 800 $\mu L/min$. Les meilleurs ajustements sont obtenus avec $spmax = 0.24$, $vT = 8\times10\text{-}4\ m/s$ (gauche) ; $spmax = 0.071$, $vT = 1.12\times10\text{-}2\ m/s$ (droite).....144
Figure 106 : Evolution du paramètre $kpspmax$, obtenu par ajustement des profils temporels de saturation, en fonction du nombre capillaire modifié $Ca\theta$ pour prendre en compte les propriétés de mouillage. Les carrés correspondent aux valeurs obtenues avec $kp = 300\ m\text{-}1$, les cercles à celles obtenues avec $kp = 103\ m\text{-}1$. En insert, valeur de $spmax$ (pour $kp = 103\ m\text{-}1$) en fonction du nombre capillaire $Ca'\theta$ calculé à partir de la vitesse de déplacement observée de l'huile, à savoir le paramètre vT du modèle, laissé libre pendant l'ajustement..145
Figure 107 – Dispositif expérimental coreflood pour l'étude de la production d'huile 149
Figure 108 – Superposition des spectres de traceur passif, formulation tensioactive et de l'huile colorée en rouge 150
Figure 109 – Evolution de la tension interfaciale pour la formulation SDBS 1g/L et différentes salinités en fonction de la concentration en colorant rouge dans l'huile mesurée par goutte tournante 150
Figure 110 – Design de la burette en sortie de montage pour la quantification de l'huile produite 151
Figure 111 –Courbe de désaturation capillaire obtenue par centrifugation (courbe rouge) et domaine de nombres capillaires investigué (rectangle brun) dans les expériences de flooding. 152
Figure 112 – Signal du spectrophotomètre et du capteur de pression différentiel lors de la récupération de l'huile résiduelle à différents débits. *Les courbes de gauche sont obtenues suite à l'injection de la formulation tensioactive. Les courbes de droite sont obtenues lors de l'étape de chasse au cours de laquelle on injecte la saumure.* 155

Figure 113 – Mesure de la quantité d'huile produite dans le dispositif de récupération après chaque palier de débit 156
Figure 114 – Comparaison entre la production d'huile avec le montage coreflood et les CDC obtenues par centrifugation et le montage CAL-X 157
Figure 115 – Evolution de la perméabilité pour les différents paliers de débits après la récupération de l'huile (exprimée en mD) 158
Figure 116 - Evolution de la perméabilité relative en eau en fonction de la saturation en eau 159
Figure 117 – Evolution de la perméabilité relative en eau en fonction du nombre capillaire 160